

Nichtlineare Effekte in Atomen:
Untersuchungen
zur verbotenen Frequenzverdopplung

Christian Steggmann

Disbui. München

1988



Nichtlineare Effekte in Atomen :
Untersuchungen zur verbotenen Frequenzverdopplung

Dissertation
der
Fakultät für Physik der
Ludwig-Maximilians-Universität
München

vorgelegt von
Christian Stegmann
aus Oakland - USA

München, den 19. Januar 1988

Gedruckt mit Unterstützung des Deutschen Akademischen Austauschdienstes.

1. Gutachter: Prof. Dr. H. Walther

2. Gutachter: Prof. Dr. H.W. Schrötter

Tag der mündlichen Prüfung: 24. Mai 1988

Abstract

The present work studies second harmonic generation (SHG) in gases. Although SHG is forbidden in centro-symmetric media, it has been observed by several groups, leading to a variety of theories explaining its origin. One of these theories is based upon the idea that photoelectrons, produced by multiphoton ionization due to the high laser intensities, create electric fields which destroy atomic symmetries and make SHG possible. Nevertheless, some predictions of this theory are not observed experimentally. Another theory states that collisions among gas particles should contribute to SHG. Goal of the present work was to verify these theories experimentally.

Therefore, the effect was investigated in atomic beams, under near-collisionless conditions. Coherent light of a tunable dye-laser was used and its wavelength chosen so that a 2-photon resonant transition from the ground state $4s$ of potassium to the $10d$ or $12s$ states would take place. SHG was then measured and found to be narrow-bandwidth, coherent emission of the upper $10d$ or $12s$ levels to the $4s$ ground state.

In order to investigate the theoretical predictions under collisionless conditions an atomic-beam system consisting of a linear array of numerous single atomic beams was built. Thus a long interaction zone was created to enhance the intrinsically weak SHG. The measured quantities were particle density, laser and signal intensities. The particle density was determined measuring the mass deposition rate upon an oscillating quartz crystal positioned normal to the atomic beams. To achieve a measurable SHG-signal one needs laser intensities only pulsed lasers are capable of. Moreover, to reach the excited states selectively by 2-photon absorption, a narrow-linewidth and frequency stabilized laser is needed. To achieve both, the beam of a cw frequency stabilized ring-dye-laser was amplified in a pulsed amplifier. The emitted signal radiation was fed through a monochromator and measured with a photomultiplier. Photoelectrons, generated by multiphoton ionization due to interaction of the laser light with the atoms of the beam, were

measured with a channeltron.

The strong laser intensities needed to produce SHG also lead to other nonlinear effects, such as dynamic Stark-effect, stimulated hyper-Raman scattering (SHRS) and 3-photon ionisation. These effects were investigated together with SHG.

In the experiment the frequency dependences of SHG, SHRS and 3-photon ionisation were measured. Following, the influence of particle density and laser intensity upon SHG and SHRS was also measured.

The results show that the dynamic Stark-effect determines the lineshape and linewidth of the measured nonlinear effects. In the case of SHG, the nonlinear character is evidenced by the quadratic dependence, in the case of SHRS by the exponential dependence of signal intensity upon laser intensity. The dependence of signal energy upon particle density came out to be quadratic for SHG and exponential for SHRS.

These results are compared to the theories and it is shown that the measured SHRS corresponds to the theoretical predictions. The quadratic dependence of SHG intensity upon particle density, however, is not in accordance with any of the theories published until recently. These predict at least a cubic dependence and at the end of this work modifications of existing theories are proposed. Recently, a new collision-effect based theory has been developed (and is to be published) which predicts the measured quadratic particle density dependence. Comparisons of experimental results to these new theoretical predictions are made.

Zusammenfassung

In der vorliegenden Arbeit wird die Frequenzverdopplung in Atomdämpfen untersucht. Dieser Effekt ist in zentralsymmetrischen Medien verboten. Da er dennoch experimentell nachgewiesen werden kann, sind zu seiner Erklärung in letzter Zeit verschiedene Theorien entwickelt worden. Eine dieser Theorien stützt sich auf die Annahme, daß die durch die hohen Laserintensitäten erzeugten Photoelektronen, die durch Mehrphotonenionisation entstehen, elektrische Felder verursachen, die die Symmetrie der Atome zerstören und so die Frequenzverdopplung ermöglichen. Diese Theorie stimmt jedoch nicht quantitativ mit den Experimenten überein. Eine andere Theorie sagt voraus, daß Stöße zwischen den Gasteilchen einen Einfluß haben müssen. Ziel der vorliegenden Arbeit war es, diese Theorien möglichst vollständig experimentell zu überprüfen.

Zu diesem Zweck wurde die Frequenzverdopplung in Atomstrahlen, also unter quasi-stoßfreien Bedingungen untersucht. Es wurde das Licht eines durchstimmbaren Farbstofflasers verwendet. Die Wellenlänge wurde so abgestimmt, daß durch einen Zweiphotonenübergang aus dem 4s-Grundzustand das Kalium Atom in den 10d- oder in den 12s-Zustand angeregt wurde, um eine resonante Verstärkung des Effekts zu erreichen. Die Frequenzverdopplung wurde dann als schmalbandige kohärente Emission der angeregten 10d- oder 12s-Zustände in den 4s-Grundzustand nachgewiesen.

Die verwendete Atomstrahlanordnung bestand aus einer linearen Anordnung vieler einzelner Atomstrahlen. So wurde eine möglichst lange Wechselwirkungszone erreicht, um den von sich aus schwachen Effekt zu verstärken. Die für die Untersuchung wesentlichen Meßgrößen waren die Teilchendichte, die Laser- und die Signal-Intensitäten. Die Teilchendichte wurde über die Massenanlagerungsrate auf einen senkrecht zu den Atomstrahlen stehenden Schwingquarz bestimmt. Für eine meßbare Frequenzverdopplung müssen Laserintensitäten verwendet werden, wie sie nur von gepulsten Lasern geliefert werden können. Um eine selektive Anregung der Zustände zu erhalten, ist außerdem ein schmalbandiger frequenzstabiler

Laser erforderlich. Um beides zu erreichen, wurde der Strahl eines frequenzstabilisierten Farbstoff-Ringlasers gepulst nachverstärkt. Die emittierte Strahlung wurde durch einen Monochromator analysiert und mit einem Photovervielfacher nachgewiesen. Die Photoelektronen, die durch Mehrphotonenionisation der Atomstrahlen erzeugt wurden, sind mit einem Channeltron gemessen worden.

Die hohen Laserintensitäten, die zur Erzeugung der Frequenzverdopplung verwendet werden müssen, verursachen andere nichtlineare Effekte, wie zum Beispiel den dynamischen Stark-Effekt, die stimulierte Hyper-Raman Streuung und die Dreiphotonenionisation. Diese Effekte wurden zusammen mit der Frequenzverdopplung untersucht.

Im Experiment wurde die Frequenzabhängigkeit der Frequenzverdopplung, der stimulierten Hyper-Raman Streuung und der Dreiphotonenionisation gemessen. Anschließend wurde die Abhängigkeit der Frequenzverdopplung und der Hyper-Raman Streuung von der Teilchendichte gemessen.

Die Ergebnisse zeigen, daß der dynamische Stark-Effekt die Linienform und die Linienbreite der gemessenen nichtlinearen Effekte bestimmt. Für die Frequenzverdopplung wird der nichtlineare Charakter aus der quadratischen Abhängigkeit von der Laserintensität ersichtlich; die Abhängigkeit von der Teilchendichte erwies sich als quadratisch.

Die Ergebnisse werden mit den Theorien verglichen und es zeigt sich, daß die Hyper-Raman Strahlung das theoretisch erwartete Verhalten zeigt. Die quadratische Abhängigkeit der Frequenzverdopplung von der Teilchendichte ist jedoch mit keinem der vorgeschlagenen Modelle im Einklang. Diese erwarten eine Abhängigkeit, die kubisch ist. Es wird eine Modifikation der theoretischen Modelle vorgeschlagen, die zu einer besseren Übereinstimmung führt. Kürzlich ist eine neue Theorie entwickelt worden, die auf einem Stoßmodell beruht und die gemessenen Abhängigkeiten korrekt voraussagt. Die Ergebnisse der Arbeit werden auch mit dieser neuen Theorie verglichen.

INHALTSVERZEICHNIS

1. Einleitung	1
1.1. Frequenzverdopplung in Gasen	1
1.2. Frühere Ergebnisse	3
1.3. Zielsetzung dieser Arbeit	5
2. Die Theorien zur Frequenzverdopplung	7
2.1. DC-Feld-Theorie: Störungstheoretische Beschreibung	8
2.1.1. Voraussetzungen der DC-Feld Theorie	9
2.1.2. Folgerungen des DC-Feld Modells	10
2.1.3. Konsequenzen des DC-Modells für das Experiment	11
2.2. Dichtematrix Beschreibung	12
2.2.1. DC-Feld Modell im Dichtematrix Formalismus	14
2.2.2. Das Stoßmodell im Dichtematrix Formalismus	15
2.2.2.1. Voraussetzungen und Folgerungen des Stoßmodells	15
2.2.2.2. Konsequenzen des Stoßmodells für das Experiment	17
2.3. Ein neues Stoßmodell	18
2.3.1. Voraussetzungen des neuen Stoßmodells	18
2.3.2. Folgerungen der neuen Stoßtheorie	19
2.3.3. Folgen des neuen Modells für das Experiment	20
2.4. Phasenanpassung	21
2.4.1. Frequenzverdopplung	21
2.4.2. Stimulierter Raman-Prozeß	22

2.5. Durchstimmverhalten und Dynamische Stark-Verschiebung	24
2.5.1. Leistungsverbreiterung	24
2.5.2. Dynamische Stark-Verschiebung	25
3. Experimenteller Aufbau	27
3.1. Laser	28
3.2. Das Atomstrahlensystem	32
3.3. Die Meßapparatur	35
3.3.1. Wellenlängenbestimmung	35
3.3.2. Bestimmung der Lichtintensität	35
3.3.3. Teilchendichte im Atomstrahl	37
3.3.4. Photoelektronenstrom	40
3.3.5. Der Heat-Pipe Ofen	41
4. Experimentelle Ergebnisse	42
4.1. Messungen mit der Heat-Pipe	43
4.2. Messungen mit den Atomstrahlen	44
4.2.1. Identifizierung der Linien	45
4.2.2. Durchstimmkurven	46
4.2.2.1. Durchstimmkurve für die Frequenzverdopplung	46
4.2.2.2. Die Idler-Linie	49
4.2.2.3. Drei-Photonen Ionisation	50
4.2.3. Abhängigkeit von der Laserleistung	52
4.2.3.1. Frequenzverdopplung	53

4.2.3.2. Stimulierte Hyper-Raman Streuung	55
4.2.4. Abhängigkeit von der Teilchendichte	57
4.2.5. Idler-Linie	57
4.2.6. Abhängigkeit der Frequenzverdopplung von der Teilchendichte	60
5. Diskussion	63
Anhang A. Kollimation der Atomstrahlen	66
A.1. Theorie	66
A.2. Kollimationsmessungen	69



1. Einleitung

Die nichtlineare Optik untersucht Eigenschaften der Wechselwirkung zwischen Licht und Materie, die sich abhängig von der Intensität des einfallenden Lichtes ändern - im Gegensatz zur klassischen, oder linearen Optik, deren Eigenschaften von der Lichtintensität unabhängig sind. Wegen der hohen Lichtintensitäten, die mit Lasern erreicht werden können, ist die Laserphysik seit ihren Ursprüngen eng mit der nichtlinearen Optik verknüpft.

1.1. FREQUENZVERDOPPLUNG IN GASEN

Der erste nichtlineare Effekt wurde von Franken et al.¹ beobachtet. Er fokussierte einen Rubin-Laserstrahl in einen Quarz-Kristall und erzeugte die 2. Harmonische (SHG für Second Harmonic Generation) der Rubin-Laserfrequenz.

Eine phänomenologische Beschreibung nichtlinearer Effekte in isotropen Medien kann über die Polarisation des Mediums erfolgen, die in einer Reihenentwicklung in Potenzen der elektrischen Feldstärke dargestellt werden kann. Im allgemeinen Fall kann man die Polarisation in einem störungstheoretischen Ansatz folgendermaßen schreiben (wobei $\vec{P}$ die Polarisation, $\vec{E}$ die elektrische Feldstärke und $\chi^{(i)}$ die Suszeptibilitäten sind):

$$\vec{P} = \epsilon_0 \chi^{(0)} + \epsilon_0 \chi^{(1)} \cdot \vec{E} + \epsilon_0 \chi^{(2)} : \vec{E} \vec{E} + \epsilon_0 \chi^{(3)} : \vec{E} \vec{E} \vec{E} + \dots \quad (1)$$

Der erste Term beschreibt ein Medium mit permanenter Polarisation, der zweite stellt die bekannte Eigenschaft des linearen optischen Brechungsindex dar. Das Experiment von Franken bestätigte die Existenz des dritten Termes, allerdings für Kristalle. In der darauffolgenden Entwicklungsperiode der nichtlinearen Optik wurde hauptsächlich nach Substanzen gesucht, die große χ 's höherer Ordnung aufweisen (für atomare Gase und Dämpfe allerdings verschwindet $\chi^{(2)}$ im Idealfall, wie später noch ausgeführt wird). Man war an einem möglichst hohen $\chi^{(2)}$

interessiert, um eine möglichst effektive Frequenzverdopplung von Laserstrahlen zu erreichen. Im Laufe der Zeit wurden Methoden gefunden, um die verschiedenen Ausbreitungsgeschwindigkeiten von der Grundwelle und von den harmonischen Wellen durch Verwendung doppelbrechender Kristalle zu kompensieren^{3,4}. Es wurden auch neue nichtlineare Kristalle mit höheren χ 's entwickelt.

Erst viel später schenkte man der Erforschung nichtlinearer Effekte in Gasen mehr Aufmerksamkeit. Ein einfacher Grund dafür ist, daß $\chi^{(2)}$ in Medien mit Zentralsymmetrie gleich Null ist. Dies bedeutet, daß der erste nichtverschwindende Anteil in atomaren Gasen der $\chi^{(3)}$ Term ist, der zu einer Erzeugung einer nichtlinearen Polarisierung führt. Außerdem gibt es in Gasen keine Anisotropie des Brechungsindex, die eine Phasenanpassung (Phase-matching) zwischen der Grundwelle und der harmonischen Welle erlaubt, wie z.B. in einem doppelbrechenden Kristall. Hinzu kommt, daß in Gasen weitaus niedrigere Teilchendichten vorhanden sind als in Festkörpern.

Gase bieten jedoch auch viele Vorteile: Sie werden durch hohe Laserleistungen nicht zerstört, sie sind auch über größere Längen als optische Medien leicht präparierbar, und sie haben gute Durchlässigkeit im UV und IR Bereich. Durch resonante Einstrahlung können nichtlineare Effekte erheblich überhört werden. Die ersten nichtlinearen Effekte in Gasen wurden von New und Ward^{5,6} demonstriert, die das Licht eines Rubinlasers in eine Gas-Zelle fokussierten und die 3. Harmonische erzeugten. Der Wirkungsgrad war jedoch wegen nicht-resonanter Einstrahlung und wegen geringen Kohärenzlängen (keine Phasenanpassung) noch sehr klein. Harris und Miles⁷ haben den Wirkungsgrad um einige Größenordnungen erhöht, indem sie mit einer Alkalidampf-Edelgas-Mischung dafür sorgten, daß die Ausbreitungsgeschwindigkeiten der Grundwelle und der 3. Harmonischen gleich wurden. Die 3. Harmonische wurde resonant mit einem Alkali-Übergang erzeugt; die Dispersion im Edelgas glich die unterschiedlichen Ausbreitungsgeschwindigkeiten beider Wellen aus. Eine ausführliche Übersicht über nichtlineare Effekte in Gasen findet man bei Hanna et al.⁸

Für diese Dissertation wurde die verbotene Frequenzverdopplung in atomaren Gasen experimentell untersucht. Das hierfür benutzte Energie-Niveau-Schema ist auf Bild 1 zu sehen. Die wichtigen atomaren Zustände sind mit $|1\rangle$, $|2\rangle$ und $|3\rangle$ bezeichnet. Die Zustände $|1\rangle$ und $|2\rangle$ haben die gleiche Parität, die entgegengesetzt

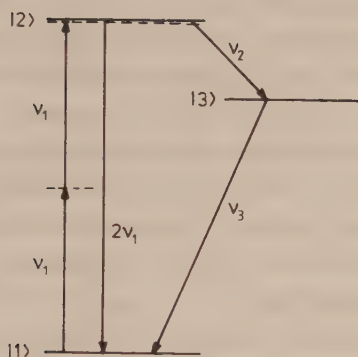


Abb. 1: Das für das Experiment verwendete Energie-Niveau-Schema. ν_1 ist die Laserfrequenz, $2\nu_1$ ist die Frequenz der 2. Harmonischen und ν_2 und ν_3 bezeichnen die Frequenzen der stimulierten Hyper-Raman Streuung.

zur Parität von $|3\rangle$ sind.

Daraus ergibt sich die Problematik des Themas : Die Zustände $|2\rangle$ und $|3\rangle$ einerseits und $|3\rangle$ und $|1\rangle$ andererseits sind zwar durch Dipol-Übergänge gekoppelt, nicht aber die Zustände $|1\rangle$ und $|2\rangle$. Wie vorher schon erwähnt wurde, ist $\chi^{(2)}$ für Systeme mit Zentralsymmetrie gleich Null. Somit wäre auch eine Frequenzverdopplung, die durch $\epsilon_0\chi^{(2)}E^2$ (wie bei Kristallen) beschrieben wird, für solche Systeme verboten.

1.2. FRÜHERE ERGEBNISSE

Die Inversionssymmetrie in Atomen, die eine Frequenzverdopplung verbietet, kann jedoch durch Anlegen eines externen elektrischen Feldes zerstört werden, so daß die Zustände Wellenfunktionen mit gemischter Parität bekommen. In diesem Falle ist die Frequenzverdopplung erlaubt und wird durch ein $\chi^{(3)}$ beschrieben, so daß ein Null-Frequenz-Photon (das DC-elektrische-Feld) mit zwei Photonen der Laserfrequenz kombiniert, um ein Photon mit der zweifachen Frequenz zu ergeben^{10,11,21}. So konnte die 2. Harmonische in Gasen schon mit relativ geringen

Laserleistungen erzeugt werden⁹.

Wenn die Dipol-Näherung keinen Übergang erlaubt, so heißt dies noch nicht, daß keine höheren Multipol-Übergänge möglich sind. Elektrische Quadrupol-Übergänge werden möglich, wenn man zwei Laserstrahlen in einer nicht-kollinearen Geometrie¹¹ verwendet, oder wenn man ein transversales Magnetfeld anlegt¹². Bethune et al.¹¹ benutzten z.B. gekreuzte Laserstrahlen in einer nicht-kollinearen Anordnung, um elektrische Quadrupol-Übergänge zu erzeugen, die von einem $\chi^{(2)}$ mit entsprechenden Quadrupol-Matrixelementen beschrieben werden können. Solche Effekte werden durch zusätzliche externe Eingriffe verursacht und können auch zufriedenstellend erklärt werden.

Es sind jedoch auch verbotene Übergänge ohne Anlegen externer elektrischer oder magnetischer Felder beobachtet worden, indem z.B. ein einziger Laserstrahl in einen Metaldampf fokussiert wurde¹³⁻²⁰. Außerdem sind sogar s-s Übergänge, die für alle Multipol-Ordnungen verboten sind, beobachtet worden¹⁷⁻²⁰. Schon in den 20er Jahren wurden verbotene s-d Übergänge in Alkali-Dämpfen in Absorption und in Emission beobachtet^{25,31-34}. Ein theoretisches Modell für diesen Effekt wurde von Mossberg et al.¹³ vorgeschlagen und fand seinerzeit allgemeinen Anklang, da es sehr einleuchtend wirkte. Es stützt sich auf die Annahme, daß der Laserpuls eine Mehrphotonenionisation hervorruft, die radiale elektrische Felder auf Grund der Ladungstrennung verursacht. Diese Felder wirken sich dann genauso wie extern angelegte Felder aus. Bethune³⁰ hat diesen Effekt im Detail behandelt. Seine Berechnungen zeigen, daß die Frequenzverdopplung (abgekürzt SHG für Second Harmonic Generation) auf Grund dieser spontan erzeugten Felder um Größenordnungen stärker ist als SHG, das von einer nicht-Dipol (elektrische Quadrupol- oder magnetische Dipol-) Suszeptibilität 2.Ordnung $\chi^{(2)}$ aus neutralen Atomen herrührt. Eine sehr geringe Ionisation soll schon ausreichend sein, um SHG zu erzeugen. Da die Wahrscheinlichkeit der Mehrphotonenionisation bei Laserpulsen hoher Leistung sehr groß ist, wurde die Erklärung durch die spontan erzeugten elektrischen Felder allgemein akzeptiert.

Die bis dahin aufgestellte Theorie war zwar theoretisch schlüssig, aber nicht in Einklang mit experimentellen Ergebnissen¹⁵. Als sich aus einer Reihe von Messungen in Kalium¹⁸ bei hochangeregten Zuständen (Rydberg-Zuständen) neue Aspekte des Effektes ergaben, wurde ein neues Modell aufgestellt^{18,21}. Danach sollten die

im Medium vorhandenen Stöße zwischen den Teilchen während des Laserpulses die Zustände so mischen, daß Dipol-erlaubte Übergänge möglich werden.

Besagte Theorie (die wir Stoß-Theorie nennen wollen, im Gegensatz zur DC-Feld-Theorie) konnte einige experimentelle Ergebnisse (wie, z. B., die Abhängigkeit des Frequenzverdopplungwirkungsgrades von der Hauptquantenzahl n) erklären. Es blieben jedoch noch einige Punkte zu überprüfen (z.B. die Abhängigkeit der SHG von der Teilchendichte N der Atome).

Da die Stoßprozesse die Grundlage dieses Modelles bilden, sollten sich daher in Experimenten mit Atomstrahlen Unterschiede zu den bisherigen Messungen in Gasen (Dampfzellen oder Heat-Pipe) ergeben. Dies ist der Ausgangspunkt für die vorliegende Dissertation, deren Inhalt und Zielsetzung im nächsten Abschnitt umrissen werden soll.

1.3. ZIELSETZUNG DIESER ARBEIT

Ziel der im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Experimente ist es, aufzuklären, inwieweit Stoßprozesse an der Erzeugung der zweiten Harmonischen in atomaren Dämpfen wichtig sind. Dazu ist eine Anordnung notwendig, bei der der Einfluß der Stöße variiert werden kann.

Im zweiten Kapitel werden kurz die für das Experiment wesentlichen Theorien diskutiert, und die Ergebnisse zusammengefaßt, die zu erwarten sind.

Im dritten Kapitel wird der experimentelle Aufbau beschrieben, insbesondere die Anforderungen, die von der Theorie an das Experiment gestellt werden und wie diese durchzuführen sind. Es werden das benötigte Lasersystem, das Atomstrahl-System und die Meßtechnik beschrieben.

Im vierten Kapitel werden die experimentellen Ergebnisse dargestellt und diskutiert. Zuerst werden Experimente in einer Heat-Pipe und die Problematik der Bestimmung der optischen Dicke beschrieben. Danach werden die Ergebnisse der Messungen mit der Atomstrahl-Anordnung dargestellt und diskutiert. Die

Messungen an den verschiedenen Linien, nämlich der 2. Harmonischen ($|2\rangle - |1\rangle$ Übergang, Photon mit Frequenz $2\nu_1$) und der Idler-Welle ($|3\rangle - |1\rangle$ Übergang, Photon mit Frequenz ν_3) werden diskutiert. Die Idler-Welle wird als Produkt einer spontan initiierten stimulierten resonanten Hyper-Raman-Streuung in einem 2-Photonen gepumpten System identifiziert. Anschließend wird die Abhängigkeit der SHG und Idler-Linien, sowie der Photoelektronen (3-Photonenionisation) von der Pumplaser-Wellenlänge (Durchstimmverhalten) gemessen und diskutiert. Die Abhängigkeit von der Teilchendichte und das unterschiedliche Verhalten der Idler und der SHG-Linien, sowie auch die Abhängigkeit der SHG-Energie von der Pumplaser-Energie, die im Experiment gefunden wurden, werden beschrieben und kommentiert.

Im fünften und letzten Kapitel wird festgestellt, daß keines der bis vor kurzem veröffentlichten Modelle den SHG-Effekt zufriedenstellend beschreibt. Eine kürzlich veröffentlichte neue theoretische Arbeit, die im Einklang mit dem Experiment ist, wird in diesem Zusammenhang kommentiert.

Schließlich wird im Anhang noch beschrieben, wie das Atomstrahlensystem für die Erzeugung hoher Dichten mit guten Kollimationseigenschaften der Atomstrahlen konzipiert ist. Ebenfalls wird über die Messungen der Atomstrahleigenschaften berichtet.

2. Die Theorien zur Frequenzverdopplung

Es ist wohlbekannt, daß die Suszeptibilität 2.Ordnung $\chi^{(2)}$ in Medien, die ein Inversionszentrum besitzen, gleich Null ist²⁴. Quantenmechanisch wird dies aus dem Erwartungswert für die makroskopische Polarisierung klar: wenn man z. B. eine Frequenzverdopplung vornimmt, bei der 2 Photonen absorbiert werden und ein Photon mit der zweifachen Energie emittiert wird. Die erste theoretische Abhandlung über 2-Photonen Prozesse wurde schon 1929 von M. Goeppert-Mayer²² mit Störungstheorie 2. Ordnung geschrieben. Die Wahrscheinlichkeit der (resonanten) gleichzeitigen Absorption zweier Photonen^[1]

$$W_{\omega\omega} \propto |\langle 2 | \vec{r} \cdot \vec{r} | 1 \rangle|^2 \quad (2)$$

ist ungleich Null, wenn die Parität des Zustandes 1 gleich der Parität des Zustandes 2 ist. Das heißt, ein Zustand $\underline{g}$ oder $\underline{d}$ kann durch gleichzeitige Absorption von zwei Photonen aus einem Grundzustand $\underline{g}$ besetzt werden. Schreibt man jedoch den Erwartungswert des elektrischen Dipoloperators zwischen besagten Zuständen gleicher Parität so bekommt man

$$\langle \vec{p} \rangle = e \int \psi_2 \vec{r} \psi_1 d^3 r = 0 \quad (3)$$

[1] Die Wahrscheinlichkeit der Absorption eines Photons bei einem Übergang von Zustand $|1\rangle$ zu einem beliebigen Zustand $|k\rangle$ ist proportional zum Quadrat des Betrags des Erwartungswerts des elektrischen Dipoloperators, also $W_1 \propto |\langle k | \vec{r} | 1 \rangle|^2$. Dasselbe gilt für die Absorption eines Photons vom Zustand $|k\rangle$ zum Zustand $|2\rangle$, nämlich $W_2 \propto |\langle 2 | \vec{r} | k \rangle|^2$. Die Wahrscheinlichkeit der gleichzeitigen Absorption von zwei Photonen, vom Zustand $|1\rangle$ zum Endzustand $|2\rangle$ über einen Zwischenzustand $|k\rangle$ ist $W_{12} = W_1 \cdot W_2 \propto |\langle 2 | \vec{r} | k \rangle \langle k | \vec{r} | 1 \rangle|^2$. Dieses Produkt muß über alle Zustände $|k\rangle$ summiert werden. Nach den Regeln der Quantenmechanik ist aber $\sum_k |k\rangle \langle k| = \hat{1}$, wenn die $|k\rangle$'s ein vollständiges System bilden, wobei $\hat{1}$ der Einheitsoperator ist. Daraus ergibt sich $W_{12} \propto |\langle 2 | \vec{r} \cdot \vec{r} | 1 \rangle|^2$. Dasselbe erhält man, wenn die störungstheoretisch errechnete Wahrscheinlichkeit der Absorption zweier Photonen²³ $W_{12} \propto 2 |\sum_k \frac{\langle 2 | \vec{r} | k \rangle \langle k | \vec{r} | 1 \rangle}{E_{k1} - \hbar \nu_1}|^2$ durch die "closure approximation" nähert, in der angenommen wird, daß nur sehr wenige $|k\rangle$'s wesentlich beitragen, und daß die Energiedifferenz E_{k1} zwischen $|1\rangle$ und $|k\rangle$ konstant ist und ausgeklammert werden kann.

da der Operator $\hat{r}$ die Parität eines Zustandes in die jeweils entgegengesetzte umwandelt. Dieses Ergebnis bekommt man auch bei einer nichtresonanten Einstrahlung in ein Medium^{24,8}.

2.1. DC-FELD-THEORIE: STÖRUNGSTHEORETISCHE BESCHREIBUNG

Die Symmetrie der Zustände kann durch das Anlegen elektrischer Felder zerstört werden. Boyd et al.²⁶ führte ein Experiment durch, in dem auf diese Art Übergänge auftraten, die ohne äußeres Feld nicht erlaubt sind. Sie beobachteten Emissionen zwischen Rydberg s und d Zuständen und dem $3\ ^2S_{1/2}$ -Zustand, wie auch Absorption zwischen $3\ ^2P_{3/2}$ und Rydberg p Zuständen in Natrium, die durch Anlegen des Feldes möglich wurden. Interessant jedoch war, daß die Emissionen zwischen den Rydberg s und d und den $3\ ^2S_{1/2}$ Zuständen auch ohne ein elektrisches Feld stattfanden.

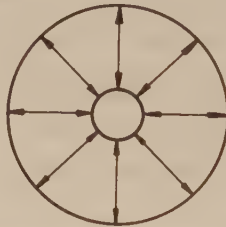


Abb. 2: Die radiale Polarisation der 2. Harmonischen, die von Miyazaki et al. (s. Text) für einen Gauss'schen Laserstrahl beobachtet wurde.

Miyazaki et al.^{14,27,28} fokussierte einen Laser nicht-resonant in Na-Dampf und beobachtete, bei TEM₀₀-Einstrahlung (räumliches Gaussprofil des Lasers), daß die erzeugte SHG-Strahlung ringförmig und radial (im Strahlquerschnitt) polarisiert war (s. Bild 2).

Der ringförmige, radial polarisierte Strahlquerschnitt ließ zunächst auf ein ringförmiges, langsam variierendes (langsam im Vergleich zum optischen Feld) elektrisches Feld schließen, daß von dem Laserfeld erzeugt wurde und die Symmetrie der sich darin befindenden Atome zerstörte. Von den damals vorgeschlagenen Modellen zur Entstehung dieses makroskopischen, quasi-statischen elektrischen Feldes, setzte sich ein Modell durch^{29,30}, das im nächsten Abschnitt diskutiert

werden soll.

2.1.1. VORAUSSETZUNGEN DER DC-FELD THEORIE

Im Folgenden soll das Modell der freien Expansion der Photoelektronen diskutiert werden, das zur Entstehung eines DC-Feldes führt. So wurden für die Entwicklung dieses Modells folgende Annahmen allgemein akzeptiert^{13,30}:

Das statische elektrische Feld entsteht durch Mehrphotonenionisation. Die Photoelektronen entfernen sich mit einer anfänglichen kinetischen Energie von den ionisierten Atomen, bis der Betrag der elektrostatischen Energie der räumlichen Ladungstrennung den Wert der ursprünglichen kinetischen Energie erreicht. Die anfängliche kinetische Energie ist gleich der Differenz zwischen der Mindestzahl der zur Photoionisation absorbierten Photonen n und der Ionisationsenergie W_{ion} ¹⁷, also

$$T_0 = nh\nu_1 - W_{ion} = \frac{1}{2}mv_0^2 \quad (4)$$

Das heißt

$$\frac{1}{2}mv_0^2 \simeq e|E(r_{max}, t_{max})|v_0 t_{max} \quad (5)$$

wobei m die Masse des Elektrons, v_0 die Anfangsgeschwindigkeit, e die Ladung des Elektrons, E das langsam variierende, zeit-und-raumabhängige elektrische Feld und t_{max} die Zeit bis zum Erreichen des Umkehrpunktes des Elektrons sind. Mit der Annahme, die Ionen seien wegen ihrer viel größeren Masse unbeweglich, polarisiert sich die Ladungsverteilung symmetrisch um die Laserstrahlachse. Die Ionen befinden sich in der Mitte mit der Verteilungsfunktion $f(r, t = 0)$ und die Elektronen mit der Verteilungsfunktion¹⁷

$$f(r, t = t_{max}) = \int f(r - vt, 0) F(v) dv$$

wobei $F(v)$ die Geschwindigkeitsverteilung (bei $t = 0$) der freien Elektronen darstellt. Das heißt, man bekommt für eine Poisson-Gleichung

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{E}(r, t_{max}) = 4\pi e[f(r, 0) - f(r, t_{max})]$$

Daraus folgt

$$\vec{E}(r, t_{max}) = -2\pi e v_m^2 t_{max}^2 \vec{\nabla} f(r, 0)$$

wenn für $F(v)$ eine Maxwell-Verteilung mit $v_m^2 \simeq v_0^2/2$ und $f(r, 0) = N e^{-(r^2/r_0^2)}$ angenommen werden. So erhält man ein radiales elektrisches Feld

$$E_{rad}(r, t_{max}) = 2\pi e N_{ion} \frac{v_0^2 t_{max}^2}{r_0^2} r e^{-(\frac{r^2}{r_0^2})} \quad (6)$$

das einen Maximalwert von

$$E_{rad, max} = E_{rad}(r = r_0/\sqrt{2}) \quad (7)$$

erreicht, was wiederum die Zeit t_{max} über $r_0/\sqrt{2} = v_0 t_{max}$ liefert. Aus (5) und (7) bekommt man eine Abschätzung für $v_0 t$ und damit

$$E_{rad}(r) = .44 \times N_{ion}^{1/3} r e^{-(\frac{r^2}{r_0^2})} \quad (8)$$

Man bekommt so, für $N_{ion} = 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ ein elektrisches Feld von $\approx 9 \text{ kV/cm}$, in einer Zeit von 2 psec. Für niedrigere Ionendichten, z.B. $N_{ion} = 10^{12} \text{ cm}^{-3}$, bekommt man eine Zeit, bis das elektrische Feld das Maximum von $\approx .2 \text{ kV/cm}$ erreicht, von 90 psec¹⁷.

Andere, semi-empirische Abschätzungen, weisen auf Felder zwischen 7 kV/cm und 58 kV/cm hin¹⁷, für Teilchendichten $N \approx 10^{15} \text{ cm}^{-3}$. Sogar bei einer geringen Photoionisation werden ziemlich hohe elektrische Felder erzeugt¹¹.

2.1.2. FOLGERUNGEN DES DC-FELD MODELLS

Nach dieser Theorie werden über eine Dipol-erlaubte Suszeptibilität 3.Ordnung $\chi^{(3)}$ 2 Photonen mit Frequenz ν_1 mit einem Photon der Frequenz 0 (das quasi-statische Feld) gemischt um die 2. Harmonische bei $2\nu_1$ zu produzieren.

Das heißt, man erwartet daß die nichtlineare Polarisisation

$$P_{SHG} \propto N \chi^{(3)} E_{\nu_1}^2 E_{DC}$$

Da aber

$$E_{DC} \propto N_{ion} \quad (9)$$

und

$$N_{ion} \propto N I_{\nu_1}^n \quad (10)$$

(wobei E_{DC} das statische elektrische Feld, N_{ion} die Ionen- bzw. Elektronen-Dichte, n die Mindestzahl der Photonen für die Photoionisation und N die Teilchendichte sind) ist zu erwarten, daß

$$W_{SHG} \propto N^4 I_{\nu_1}^{2n+2} \quad (11)$$

Für hohe Ionendichten²¹, wo

$$E_{DC} \propto N_{ion}^{1/2} \quad (12)$$

ist

$$W_{SHG} \propto N^3 I_{\nu_1}^{n+2} \quad (13)$$

Die spezifischen Bedingungen für die Ionendichte hängen von den jeweiligen experimentellen Verhältnissen ab.

2.1.3. KONSEQUENZEN DES DC-MODELLS FÜR DAS EXPERIMENT

Ohne die spezifischen Verhältnisse für die Ionendichte zu diskutieren, kann auf alle Fälle erwartet werden, daß

$$W_{SHG} \propto N^a I_{\nu_1}^b \quad (14)$$

wobei $a \geq 3$, $b > 3$.

Es ist jedoch weder die Abhängigkeit von (11) noch die von (13) in den bisherigen experimentellen Arbeiten beobachtet worden^{13,15,17,18,27,28}. Die Abhängigkeiten waren lediglich

$$W_{SHG} \propto N^2 I_{\nu_1}^2$$

Um diese Überlegungen fortzusetzen, wird im folgenden Kapitel eine nicht-störungstheoretische Beschreibung von 2-Photonen-gepumpten Effekten vorgestellt, und es werden neue Erwägungen bezüglich der Ursache der dipol-verbotenen Frequenzverdopplung dargelegt.

2.2. DICHEMATRIX BESCHREIBUNG

Louisell und Meystre³⁵, und danach Guzman²¹, entwickelten eine störungstheoretische Behandlung nichtlinearer Prozesse. Diese bewährte sich dadurch, daß sie die nicht-vernachlässigbaren Umbesetzungen der Zustände bei hohen Lichtintensitäten in den Rechnungen berücksichtigte. In einer semi-klassischen Theorie, wo die Materie quantenmechanisch und die Felder klassisch behandelt und miteinander gekoppelt wurden, ergab dieser Formalismus eine akkurate Beschreibung 2-Photonen-gepumpter nichtlinearer Effekte²¹. Dabei wurde die induzierte nicht-lineare Polarisation als Quelle für die elektromagnetischen Felder genommen. Dieser Formalismus erwies sich bei der Beschreibung der nichtlinearen Effekte als notwendig, da man schon bei geringen Leistungen in Vielphotonen-gepumpten Systemen erhebliche Entvölkerungen der Grundzustände feststellen konnte, so daß ein störungstheoretischer Ansatz nicht mehr zutreffend war^{35,36}. In Anlehnung an diese Arbeiten²¹ wird zunächst der SHG-Effekt im Dichtematrix Formalismus beschrieben.

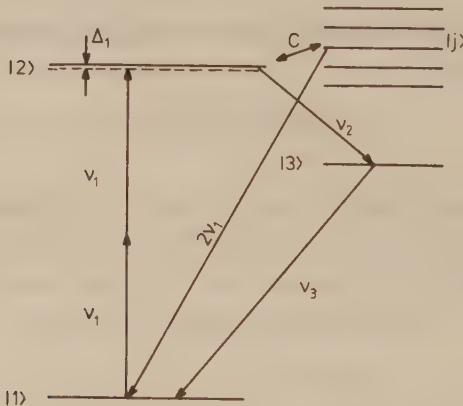


Abb. 3: Dieses Energie-Niveau-Schema zeigt die starke 2-Photonen-Anregung des Zustands $|2\rangle$ aus dem Grundzustand $|1\rangle$. Durch die Wechselwirkung C werden die Bahndrehimpulse gemischt, so daß die Zustände $|2\rangle$ und $|j\rangle$ miteinander gekoppelt werden.

Nimmt man an, daß die 2-Photonen angeregten Zustände $|2\rangle$ durch irgendeinen Mechanismus während der Wechselwirkungszeit (Laserpuls) gemischt werden, kann man das Mischen im Hamilton-Operator beschreiben :

$$H = H_0 + U + C \quad (15)$$

wobei H_0 das ungestörte System beschreibt, U die Wechselwirkung zwischen Pumpfeld und Atom, und C die Misch-Wechselwirkung (s. Bild 3). Die dipol-erlaubte Kohärenz zwischen $|1\rangle$ und $|j\rangle$ ist, in der adiabatischen Näherung,

$$\rho_{1j}(t) \simeq \frac{c_{2j}(t)\rho_{12}(t)}{\hbar\Delta_{1j}}$$

wobei $c_{2j}(t)$ die zeitabhängige Kopplung, $\rho_{12}(t)$ die ebenfalls zeitabhängige 2-Photonen Kohärenz und $\Delta_{1j} = \omega_{2j} - \Delta_1 - i\gamma_{1j}$ die Verstimmung sind. ω_{2j} ist der Energie-Abstand zwischen $|2\rangle$ und $|j\rangle$, Δ_1 ist die 2-Photonen Verstimmung, und γ_{1j} ist die nichtdiagonale Relaxationsrate der $|1\rangle - |j\rangle$ Kohärenz. $c_{2j}(t) = \langle 2|C|j\rangle$ beschreibt die Misch-Wechselwirkung.

In dieser Beschreibung ist dann die makroskopische Polarisation²¹

$$\vec{P}_{SHG} = N \left\{ \frac{\vec{d}_{j1}c_{2j}(t)\rho_{12}(t)}{\hbar\Delta_{1j}} e^{2i(\nu_1 t - k_1 z)} + c.c. \right\}$$

Diese Beschreibung ist insofern günstig, da bis zu diesem Punkt noch keine Annahmen bezüglich der Ursache der Zustandsmischung gemacht werden müssen.

Man sieht, daß die induzierte Polarisation bei $2\nu_1$ von der 2-Photonen Kohärenz ρ_{12} , vom erlaubten Dipolmoment $\vec{d}_{j1}$ und von der Misch-Wechselwirkung c_{2j} abhängt.

Übertragen auf die ausgestrahlte Energie ergibt dies:

$$\int_{-\infty}^{+\infty} |\varepsilon_\omega|^2 d\omega = \frac{4\nu_1^2}{c^2\varepsilon_0^2} N^2 |\rho_{21}(t_0)|^2 \int_0^L dz' \int_0^L dz'' e^{i\Delta k(z' - z'')} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega |\overline{d_{12}}|^2$$

wobei

$$|\overline{d_{12}(\omega)}|^2 = \left| \frac{d_{1j}}{\hbar\Delta_{1j}} \right|^2 |c_{j2}(b, v, \omega)|^2$$

das durch die Mischung induzierte effektive Dipolmoment ist. Die Fouriertransformierte des frequenzabhängigen Feldes gibt die Zeitabhängigkeit wieder.

Über die spezielle Form der Matrixelemente c_{j2} ist bisher nichts gesagt worden; sie hängt von dem zugrunde liegenden Modell ab. Die zwei häufig benutzten Modelle sollen nun näher diskutiert werden.

2.2.1. DC-FELD MODELL IM DICHEMATRIX FORMALISMUS

Setzt man als Mischmechanismus das schon erwähnte quasi-statische elektrische Feld in die soeben eingeführte nicht-störungstheoretische Beschreibung ein, so daß

$$C = -\vec{d} \cdot \vec{E}_{DC} \quad (16)$$

(mit $c_{2j} = -\vec{d}_{2j} \cdot \vec{E}_{DC}$) die Energie der Wechselwirkung ist, so kann man die störungstheoretischen Ergebnisse reproduzieren²¹. Dabei bekommt man für die bei $2\nu_1$ abgestrahlte Energie

$$W_{SHG} = \frac{4\nu_1^2}{c\epsilon_0} N^2 |\vec{d}_{1j}|^2 \frac{|\vec{d}_{2j} \cdot \vec{E}_{DC}|^2}{(\hbar\Delta_{1j})^2} L^2 \iint dr_{\perp} dt |\rho_{21}|^2 \cdot \frac{\sin^2(\frac{\Delta k L}{2})}{(\frac{\Delta k L}{2})^2} \quad (17)$$

wobei $r_{\perp}$ den Abstand zur Laserachse darstellt. Der Faktor $\frac{\sin^2(\frac{\Delta k L}{2})}{(\frac{\Delta k L}{2})^2}$ beschreibt die Phasenanpassung zwischen der Grundwelle und der 2. Harmonischen im Medium der Länge L (s. Abschnitt "Phasenanpassung"). Das doppelte Integral beschreibt die 2-Photonen Kohärenz ρ_{21} , die proportional zur 2-Photonen Rabi-Frequenz

$$V_{21} = \frac{k_{21} E_{\nu_1}^2}{2\hbar} = \frac{I_{\nu_1}}{c\epsilon_0 2\hbar} k_{21} \quad (18)$$

ist, wobei

$$k_{21} = \frac{1}{2\hbar} \sum \frac{d_{2j} d_{j1}}{(\omega_{2j} - \nu_1)} \quad (19)$$

über alle Zustände addiert wird. Die 2-Photonen Kohärenz ist also proportional zur Laserintensität I_{ν_1} und wird über die transversale Koordinate $r_{\perp}$ und über die Zeit integriert.

Aus der Gleichung (17) sieht man gleich, daß

$$I_{SHG} \propto N^2 I_{\nu_1}^2 \quad (20)$$

nur dann ist, wenn $\vec{E}_{DC}$ unabhängig von N und I_{ν_1} ist. Dieses ist aber schwer zu verstehen, wenn man annimmt, daß das statische elektrische Feld aus der Photoionisation stammt (vgl. 2.2).

2.2.2. DAS STOSSMODELL IM DICHEMATRIX FORMALISMUS

Man kann sich nun überlegen, wie das Verhalten der Polarisierung bei $2\nu_1$ wäre, wenn, anstatt eines statischen elektrischen Feldes, die Stöße für die Frequenzverdopplung verantwortlich wären. Das einzige, was sich in der soeben vorgestellten Beschreibung ändern würde, wäre der Mischterm $c_{2j}(t)$.²¹

Die Idee, daß die Stöße für die Frequenzverdopplung verantwortlich sein könnten, stammt aus einer Messung¹⁸, in der der Wirkungsgrad der 2. Harmonischen in Abhängigkeit von der Hauptquantenzahl n der resonanten 2-Photonenanregung gemessen wurde. Das Verhalten war ähnlich wie der des Stoßwirkungsquerschnittes zwischen Alkali-Rydbergatomen und Edelgas-Atomen im Grundzustand, in Abhängigkeit von n . Bei kleinem n steigt der Wirkungsquerschnitt proportional zur geometrischen Größe des angeregten Atoms, erreicht ein Maximum bei $n \approx 10 - 13$ und wird dann zunehmend kleiner, so wie die Wahrscheinlichkeit, das schwach gebundene Elektron zu treffen, kleiner wird^[2]. Als dieses Verhalten beobachtet wurde, nahm man an, daß sich Edelgasatome und Metaldampf-Atome im Inneren einer Heat-Pipe (s. Erläuterungen zur Heat-Pipe im zutreffenden Abschnitt) mischen. Bei einem korrekten Heat-Pipe Betrieb findet eine räumliche Trennung zwischen Metaldampf und Edelgas statt, so daß man für eine quantitative Vorhersage in diesem Fall nur Stöße zwischen Alkalien betrachten müßte.

2.2.2.1. VORAUSSETZUNGEN UND FOLGERUNGEN DES STOSSMODELLS

Die Grundidee des Stoßmodells ist, daß während der Dauer eines Stoßes, der durch den zeitabhängigen Mischparameter $c_{2j}(t)$ beschrieben wird, sich ein Kanal für einen mit der Frequenz $2\nu_1$ schwingenden Dipoloperator öffnet, dessen Amplitude $c_{2j}(t)$ ist. Dabei wird angenommen, daß die Stoßdauer durch den Quotienten vom Durchmesser des Rydbergatoms $\sim a_0 n^2$ und mittlerer thermischer Geschwindigkeit $\bar{v}_{th}$ gegeben wird (Bei $n = 10$ und $\bar{v}_{th}(400^\circ\text{C}) \approx 600\text{ m/s}$ ist

^[2]Dagegen sind die Wirkungsquerschnitte zwischen Alkalien und angeregten Alkalien viel größer, vorwiegend proportional zum geometrischen Querschnitt.

die Stoßdauer $\tau_c \approx 10^{-11} - 10^{-10}$ s). Diese liegt zwischen der inversen optischen Frequenz ($10^{-16} - 10^{-15}$ s) und der inversen Rabifrequenz (10^{-9} s). Das heißt, daß die 2-Photonen Kohärenz $\rho_{12}(t)$ langsam im Vergleich zu c_{2j} (der Stoßdauer) variiert.

Eine weitere Annahme des Stoßmodells ist, daß langreichweitige Stöße zu einem Mischen genügen und daß die Phasenbeziehung der emittierten $2\nu_1$ Strahlung bei derartigen Stößen kohärent zur Laserstrahlung erhalten bleibt^[3].

Mit dem Ansatz, daß

$$C = 2\pi L_s \delta(\vec{r} - \vec{R}) \quad (21)$$

das Wechselwirkungspotential ist, wobei L_s die Streulänge zwischen dem Elektron und dem Störer, $\vec{r}$ die Position des Rydbergelektrons und $\vec{R}$ die Position des Störers relativ zum Kern des Rydbergatoms ist, bekommt man für das stoßinduzierte Dipolmoment

$$\overline{|d_{12}|^2} = \left| \frac{d_{1j}}{\hbar \Delta_{1j}} \right|^2 N_s \Delta t_0 2\pi \bar{v} \int_{b_w}^{\infty} b db \int_0^{\pi} \sin \beta d\beta \int_0^{2\pi} d\alpha \int_0^{2\pi} d\gamma |c_{j2}(b, v, \omega, \alpha, \beta, \gamma)|^2 \quad (22)$$

Dabei ist die Anzahl der Stöße, die ein Atom in der Zeit Δt_0 erfährt, mit Stoßparameter zwischen b und $b + db$ und Geschwindigkeiten zwischen $\bar{v}$ und $\bar{v} + d\bar{v}$:

$$N_s 2\pi b db v \mathcal{F}(v) dv \sin \beta d\beta d\alpha d\gamma \Delta t_0$$

N_s ist die Teilchendichte der Stoßpartner und $\mathcal{F}(v)$ die Geschwindigkeitsverteilung. α, β und γ sind die Euler-Winkel, die für die Rotations-Transformationen der Stoßebenen zur Laborebene erforderlich sind. Die einzelnen Stöße werden durch die relative Bewegung zwischen Störern und Rydbergatomen

$$\vec{R} = \vec{b} + \vec{v}t$$

beschrieben, wobei $\vec{b}$ der Stoßparameter und $\vec{v}$ die relative Geschwindigkeit sind. Die Stoßebene, durch $\vec{b}$ und $\vec{v}$ bestimmt, setzt auch die Quantisierungsachse für die jeweiligen Stöße fest^{21,37}. b_w stellt den Weisskopfradius dar, ab welchem der Stoßparameter integriert wird³⁷.

^[3] Würde die Phase während des Stoßes ausgeschmiert, so würde die $2\nu_1$ Strahlung nicht kohärent addieren. Dies wäre bei kurzreichweitigen Stößen der Fall.

Das stoßinduzierte Dipolmoment $\overline{|d_{12}|^2}$ kann nur numerisch berechnet werden. Analytisch kann man aber schließen, daß bei Stößen

$$I_{SHG} \propto N^2 I_{\nu_1}^2 N_s \quad (23)$$

ist.

2.2.2.2. KONSEQUENZEN DES STOSSMODELLS FÜR DAS EXPERIMENT

Nimmt man an, es seien in einem Ensemble nur Atome einer Substanz da, so bekommt man :

$$I_{SHG} \propto N^3 I_{\nu_1}^2 \quad (24)$$

Somit wäre die quadratische Abhängigkeit der 2. Harmonischen von der Pumpintensität erklärt. Für höhere Pumpintensitäten erwartet man einen Übergang zu linearer und danach weniger als lineare Abhängigkeit von der Pumpintensität. Für sehr hohe Pumpintensitäten können sich die atomaren Niveaus so verschieben, daß sie aus der 2-Photonen Laserresonanz geraten und so die SHG-Intensität geringer wird (s. Abschnitt "Dynamische Stark-Verschiebung").

Die gemessenen N^2 -Abhängigkeiten werden jedoch auch in diesem Stoßmodell nicht reproduziert.

Bisher sind alle Experimente in Zellen oder Heat-Pipes durchgeführt worden, wo eine direkte Proportionalität zwischen der Teilchendichte und der Stoßrate besteht; in solchen ist es unmöglich, Dichte und Stoßrate zu entkoppeln. In Atomstrahlen kann man die Stöße jedoch weitgehend vermeiden. Es ist also interessant, das Experiment zur Frequenzverdopplung in Atomstrahlen durchzuführen.

Im nächsten Abschnitt wird ein neu entwickeltes Stoßmodell vorgestellt.

2.3. EIN NEUES STOßMODELL

In einer neuen Arbeit beschreiben A. Elçi und D. Depatie ein neues Modell^{54,55} für die Erzeugung der zweiten Harmonischen, wobei die Stöße unter dem Einfluß von Strahlungsfeldern behandelt werden. Ein Ergebnis dieser Theorie ist eine Beschreibung der Frequenzverdopplung, die mit den experimentellen Ergebnissen, insbesondere mit der N^2 -Abhängigkeit qualitativ übereinzustimmen scheint.

2.3.1. VORAUSSETZUNGEN DES NEUEN STOßMODELLS

Mit einem Hamiltonoperator werden alle Atome eines Mediums paarweise als binäre Stoßkomplexe in Streuzuständen mit dem Strahlungsfeld gekoppelt. So wird die globale Symmetrie im atomaren Dampf zerstört und die kohärente 2. Harmonische der Laser-Feldmode erzeugt. Das Laserfeld modifiziert die Stoßdynamik. Die Atome werden paarweise gekoppelt, so daß Atome eines Paares miteinander kollidieren. Die Lösungen für diese binären Stöße werden durch die quantenmechanischen Streuzustände eines Paares beschrieben. Dabei entspricht jedem Streuzustand eines Paares ein eindeutig definierter asymptotischer Zustand. Im Grenzfalle des verschwindenden Stoßpotentials geht der Streuzustand in einen asymptotischen Zustand über.

Wenn $|\psi\rangle$ den asymptotischen Zustand des Paares beschreibt, ist

$$|\psi^+\rangle = \Omega^{(+)}|\psi\rangle \quad (25)$$

der Streuzustand, und

$$\Omega^{(+)} = 1 + \frac{V}{E - H_A - V + i\epsilon} \quad (26)$$

wobei E die Energie des Streuzustands, H_A der asymptotische Hamilton-Operator des Stoß-Komplexes, V das lokalisierte Stoßpotential, und ϵ eine infinitesimale Größe ist. Das Stoßpotential V hängt von den internen atomaren Zuständen und von der Entfernung zwischen den beiden Atomen ab. Die Gleichung (25) kann als kanonische, unitäre Transformation aufgefaßt werden, solange durch V keine

nicht-vernachlässigbaren gebundenen Zustände beider Atome (z.B. chemische Verbindungen) induziert werden.

Die Beschreibung durch die Streuzustände mischt die Symmetrieeigenschaften der asymptotischen atomaren Zustände des Paares durch das Stoßpotential. Ein Moment-Operator P (z.B. elektrisches oder magnetisches Dipolmoment) der, bezogen auf $|\psi\rangle$ wohldefinierte Symmetrie hat, verliert allgemein seine Symmetrieeigenschaften bezogen auf $|\psi^+\rangle$.

2.3.2. FOLGERUNGEN DER NEUEN STOSSTHEORIE

Für eine Kopplung zwischen einer Laser-Feldmode und dem Stoßkomplex im Streuzustand ergibt das neue Modell durch Berechnung des Erwartungswerts des elektrischen Dipoloperators eine Polarisation bei $2\nu_1$ (also SHG)

$$P_{SHG} \approx \frac{1}{\sqrt{4\pi\epsilon_0}} (-\hat{e} e^{-2i\nu_1 t} N \mathcal{R} S(\zeta) + c.c) \quad (27)$$

wobei

$$S(\zeta) = -\frac{\zeta}{1+\zeta^2} + \frac{3}{\zeta} - \frac{3}{\zeta^2} \arctan(\zeta) \quad (28)$$

und $\zeta \propto (I_{\nu_1})^{1/2}$. Dabei ist $\hat{e}$ ein Einheitsvektor in Richtung der Laserfeld-Polarisation, N die Teilchenpaar-Dichte, und $\mathcal{R}$ ein Faktor, der sich aus den asymptotischen Energien und den Matrixelementen des Stoßpotentials zusammensetzt^[4]. Aus (27) ergibt sich, daß

$$I_{2\nu_1} \propto N^2 S^2 \quad (29)$$

^[4]Dieser Faktor hängt von der spezifischen Energie-Niveau Konfiguration ab. So ist er, um einen einfachen Fall zu nennen, bei Natrium, wo es Zustände gibt, die ungefähr die zweifache Energie haben wie der erste angeregte Zustand

$$\mathcal{R} = \frac{|\vec{d}_{10}|}{(E_1^a)^2} (Im(\mathcal{V}_{00;10})) \frac{\mathcal{V}_{02;11}}{2E_1^a - E_2^a} \left[\frac{\mathcal{V}_{10;02} + \mathcal{V}_{10;20}}{E_1^a} - \frac{\mathcal{V}_{00;12}}{E_1^a + E_1^a} \right],$$

wobei $|\vec{d}_{10}|$ das Dipol-Matrixelement zwischen dem Grundzustand und dem ersten angeregten Zustand, E_1^a die Energie dieses Zustandes, und $\mathcal{V}_{jj';j''j''''}$ die Matrixelemente des Stoßpotentials sind, wobei j (j') und j'' (j'''') die internen Zustände des ersten (zweiten) Atoms des Paares vor, bzw. nach dem Stoß im asymptotischen Limes sind.

Im nächsten Abschnitt werden die Konsequenzen dieser Ergebnisse für das Experiment diskutiert.

2.3.3. FOLGEN DES NEUEN MODELLS FÜR DAS EXPERIMENT

Aus der Formel (29) wird ersichtlich, daß die Polarisation bei $2\nu_1$ proportional zu N^2 ist. Dies kommt daher, daß die Polarisation direkt durch den Erwartungswert des Dipoloperators für das Paar von kollidierenden Atomen gegeben wird, und somit unabhängig von irgendwelchen dem Paar fremden Einflüssen ist. Die Funktion $S^2(\zeta)$ ist, für geringe Laserintensitäten I_{ν_1} , proportional zu $I_{\nu_1}^3$, danach proportional zu $I_{\nu_1}^2$ (die klassische SHG Abhängigkeit). Steigt die Laserintensität noch mehr, wird die Abhängigkeit proportional zu I_{ν_1} und dann zu $I_{\nu_1}^0$ (Sättigung des 2-Photonen Übergangs). Erhöht man schließlich die Laserintensität noch mehr, gerät das obere Niveau wegen der dynamischen Stark-Verschiebung aus der 2-Photonen-Resonanz, so daß die erzeugte Intensität der 2. Harmonischen abnimmt, und zwar mit $I_{\nu_1}^{-1}$.

Der erwartete Wirkungsgrad kann, in einer groben Näherung⁵⁶, gegeben werden durch

$$\eta \approx \frac{N^2 |d_{10}|^2}{4 \pi^2 \epsilon_0^2 |E_{\nu_1}|^2} \left[\frac{\mathcal{V}_0}{E_1^a} \right]^4 |S|^2, \quad (30)$$

wobei E_{ν_1} die elektrische Feldstärke bei der Laserfrequenz ν_1 und $\mathcal{V}_0$ das genäherte Stoßpotential-Matrixelement⁵⁶ in Energie-Einheiten sind. Letzteres wird gegeben durch

$$\mathcal{V}_0 \approx \frac{3 \hbar^2}{4 \mu a_p^3} \sqrt{\frac{\sigma_{sc}}{\pi}} \quad (31)$$

wobei a_p die effektive Reichweite des Stoßpotentials, μ die reduzierte Masse des Atoms und σ_{sc} der Wirkungsquerschnitt für die Streuung sind.

In den nächsten Abschnitten werden weitere Effekte beschrieben, die im Experiment vorkommen und berücksichtigt werden müssen.

2.4. PHASENANPASSUNG

Der grundsätzliche Unterschied zwischen parametrischen (Frequenzvervielfachung) und nicht-parametrischen (Ramanstreuung) Prozessen liegt in der Phasenanpassung, die durch den Faktor $\int_0^L e^{i\Delta k z} dz$ beschrieben wird. Dabei ist $\Delta k = 2k_{\nu_1} - k_{2\nu_1}$. Die Frequenzverdopplung ist ein Beispiel für einen parametrischen Prozess, während die Idler-Linie einem nicht-parametrischen Prozess entspricht.

2.4.1. FREQUENZVERDOPPLUNG

Im Falle der Frequenzverdopplung ist die nichtlineare Polarisation P^{nl} , die als Quelle für die Maxwell-Gleichungen gilt (semi-klassischer Ansatz)⁸

$$P_{2\nu_1}^{nl} = P_{SHG} \propto |E_{\nu_1}|^2$$

und

$$\frac{dE_{2\nu_1}}{dz} \propto |E_{\nu_1}|^2 e^{i\Delta k z}$$

Bei einem Medium der Länge L entnimmt man aus diesen Zusammenhängen, daß, bei vernachlässigbarer Pumpstrahlabschwächung, für SHG unter der Annahme ebener Wellen :

$$I_{2\nu_1}(L) \propto I_{\nu_1}^2 \left| \int_0^L e^{i\Delta k z} dz \right|^2 = I_{\nu_1}^2 L^2 \frac{\sin^2(\frac{\Delta k L}{2})}{(\frac{\Delta k L}{2})^2} \quad (32)$$

Der Phasenanpassungsparameter Δk beschreibt die Phasenfehlانpassung (im Englischen 'Phase-Mismatch' genannt) und ist gleich

$$\Delta k = \frac{2\omega}{c}(n_{\nu_1} - n_{2\nu_1})$$

Bei den Wellenlängen, die in diesem Experiment verwendet wurden ($\lambda_1 = 590 \text{ nm}$), wird

$$\Delta k = -N\pi 2.44 \cdot 10^{-17}$$

wobei N die Teilchendichte in cm^{-3} ist und Δk in cm^{-1} gegeben wird. Die Wellen sind außer Phase, wenn $\Delta k L = 2n\pi$, für $n = 1, 2, \dots$. Das erste Minimum der

sinc-Funktion in (32) definiert die Kohärenzlänge $L_c = \frac{\pi}{\Delta k}$.

In einer Heat-Pipe, die mit Teilchendichten ab 10^{15}cm^{-3} funktioniert, wird die Kohärenzlänge (41cm bei 10^{15}cm^{-3}) sehr bald kleiner als die Länge der Dampfsäule. Dies muß berücksichtigt werden, wenn die Ausbeute als Funktion der Dichte gemessen wird. In Atomstrahlen hingegen beträgt die Maximaldichte (wie in diesem Experiment) 10^{14}cm^{-3} , was einer Kohärenzlänge von 410cm entspricht.

Da die Ausdehnung der Atomstrahlen entlang der Laserachse gleich der Länge der Düsenanordnung ist und 5cm beträgt, kann man den Phasenanpassungsfaktor sinc^2 in den Atomstrahlenexperimenten gleich 1 setzen.

Damit die Bedingung einer ebenen Welle erfüllt werden kann, muß für einen gaußschen Strahl der konfokale Parameter $b^{[5]}$ viel größer sein als die Länge der Wechselwirkungszone L . Dies bedeutet, daß die Strahltaile innerhalb der Wechselwirkungslänge konstant bleiben muß. Dann wird gewährleistet, daß die Wellenfronten plan und parallel sind, und daß sich die Intensität entlang des Strahles nicht ändert. Im vorliegenden Experiment war $b = 11 \text{cm}$, $L = 5 \text{cm}$. Im realen Experiment war der Strahlquerschnitt nicht gaußförmig, trotzdem kann angenommen werden, daß die Wellenfronten nicht verzerrt und daß Variation der Intensität keine grundsätzlichen Veränderungen zur Folge hat.

2.4.2. STIMULIERTER RAMAN-PROZESS

Beim Idler-Signal gilt im Kleinsignal Bereich⁸

$$P_{idler}^{nl} \propto P_{stokes}^{nl} \propto |E_{\nu_1}|^2 E_{stokes} \propto \frac{dE_{stokes}}{dz} \quad (33)$$

was zum Namen "stimulierte Raman-Streuung" führt⁸. Das E-Feld bei ν_{Stokes} wird deshalb exponentiell verstärkt, so daß

$$I_{stokes}(L) = I_{s0} e^{\alpha N L} \quad (34)$$

^[5] $b = \pi \omega_0^2 / \lambda$, wobei ω_0 die Strahl-Taille und λ die Wellenlänge des Laserstrahls ist.

I_{s0} ist die Intensität des zu verstärkenden Probestrahls am Anfang des Mediums. Bei Abwesenheit eines Probestrahls wird die Idler-Welle durch Vakuumfluktuationen ausgelöst.

Der Verstärkungskoeffizient α ist stark abhängig von der Pump-Intensität, von den transversalen und longitudinalen Relaxationszeiten $\frac{1}{\gamma_{ij}}$ und $\frac{1}{\gamma_i}$, und von der Intensität des Signals. Im Kleinsignal-Bereich ist α unabhängig vom Signal, bei starkem Signal geht α in Sättigung über. Bei normaler 1-Photon stimulierter Raman-Streuung ist $\alpha_{GRS} \propto I_{pump}$.

Im Folgenden soll der theoretische Verstärkungskoeffizient α kurz erläutert werden.

Man definiert eine dimensionslose Intensität I_1^* so, daß

$$I_1^* = 2|V_{21}| \sqrt{\frac{1}{2\gamma_{21}} \left(\frac{2}{\gamma_2} + \frac{1}{\gamma_3} \right)} \quad (35)$$

wobei die Indizes der γ 's sich auf Bild 3 beziehen, und V_{21} die 2-Photonen Rabi-Frequenz aus (18) und (19)^{8,21} ist:

$$V_{21} = \left(\frac{1}{2\hbar} \sum \frac{d_{2j}d_{j1}}{(\omega_{2j} - \nu_1)} \right) \frac{1}{2\hbar} E_{\nu_1}^2 \quad (36)$$

Die ω_{2j} sind die atomaren Übergangsfrequenzen zwischen dem 2-Photonen-angeregten Zustand und allen in Frage kommenden Zustände $n|j\rangle$, und d_{2j} sind die entsprechenden Dipolmomente.

Im Fall von 2-Photonen stimulierter Hyper-Raman-Streuung gilt für den Verstärkungskoeffizienten, im Kleinsignal-Bereich²¹ und im stationären Fall^[6]:

$$\alpha = \frac{\frac{k_2|d_{23}|^2}{\epsilon_0 2\hbar} \left(\frac{1}{\gamma_2} - \frac{1}{\gamma_3} \right) \frac{I_1^{*2}}{(1+I_1^{*2})} \gamma_{13}}{\frac{1}{2} \left(\frac{2}{\gamma_2} + \frac{1}{\gamma_3} \right) (\gamma_{13} + \gamma_{23})^2} \mathcal{L}(\Delta'_1) \quad (37)$$

[6] Die Laserpulslänge war 5 ns, so daß man nicht von einem Dauerstrich-Betrieb des Lasers sprechen kann. Der 2-Photonen Bloch-Vektor jedoch⁵³ führt bei dem 4s-12s Übergang und einer Rabi-Frequenz von 4.55 GHz einen Winkel von 14π , bei 18.5 GHz einen Winkel von 58π aus. Bei diesen langen Pulsdauern kann man den stationären Fall als zutreffend betrachten.

wobei k_2 der Wellenvektor der ν_2 -Strahlung ist, $\mathcal{L}(\Delta'_1)$ ein Ausdruck ist, der die Linienform und Linienbreite bestimmt und für die 2-Photonen-Resonanz ($\Delta'_1 = 0$) gleich 1 ist.

Im Kleinsignalbereich kann man 2 Fälle unterscheiden:

1. Fall: Geringe Pump-Intensität.

Bei kleiner Pump-Intensität ist $I_1^* \ll 1$ und (37) wird, in 2-Photonen-Resonanz, zu²¹

$$\alpha = \frac{k_2 |d_{23}|^2}{\epsilon_0 2 \hbar} |V_{21}|^2 \left(\frac{1}{\gamma_2} - \frac{1}{\gamma_3} \right) \frac{1}{\gamma_{23}} \frac{1}{\gamma_{21}} \quad (38)$$

2. Fall: Hohe Pump-Intensität.

Bei hoher Pump-Intensität ist $I_1^* \gg 1$ (oder $|V_{21}|^2 \gg \frac{\gamma_{21}}{2(\frac{2}{\gamma_2} + \frac{1}{\gamma_3})}$). Dabei wird α in (37) unabhängig von der Pump-Intensität und man erhält

$$\alpha = \frac{k_2 |d_{23}|^2}{\epsilon_0 \hbar} \frac{(\frac{1}{\gamma_2} - \frac{1}{\gamma_3})}{(\frac{2}{\gamma_2} + \frac{1}{\gamma_3}) 2 \gamma_{13}} \quad (39)$$

wenn $\gamma_{23} \approx \gamma_{13}$ (s. Abschnitt 4.2.5).

2.5. DURCHSTIMMVERHALTEN UND DYNAMISCHE STARK-VERSCHIEBUNG

2.5.1. LEISTUNGSVERBREITERUNG

Bei den hohen auftretenden Laserleistungen werden die Linien leistungsverbreitert. Dies ist insbesondere auch der Fall bei der Frequenzverdopplung und der 3-Photonen (2-Photonen-resonanten) Ionisation. Entsprechend sind die Durchstimmkurven leistungsverbreitert und deren Breite wird durch die 2-Photonen Rabifrequenz V_{21} charakterisiert (Formel (36)). Die Durchstimmkurve der Signal-Intensität wird durch die Relaxationszeiten und, bei höheren Pump-Leistungen, durch die Pump-Leistung selber verbreitert.^{8,21}

2.5.2. DYNAMISCHE STARK-VERSCHIEBUNG

Die dynamische (oder optische) Stark-Verschiebung hängt von der spezifischen Lage der Zustände und von der Anregungsfrequenz ab und kann unter Umständen auch vernachlässigbar sein.⁸

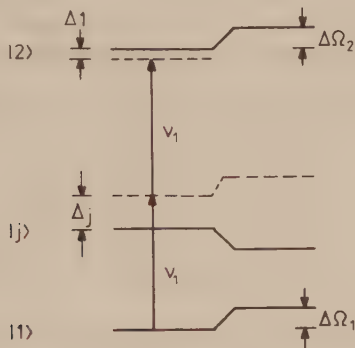


Abb. 4: Die dynamische Stark-Verschiebung. Abstimmung des Lasers auf den ungestörten $|2\rangle$ -Zustand (links) und dynamische Stark-Verschiebung der Zustände unter dem Einfluß des Laserfeldes (rechts). Im Experiment entsprach der $|2\rangle$ -Zustand dem $12s$ - oder dem $10d$ -Zustand, der $|j\rangle$ -Zwischenzustand entsprach dem $4p$ -Zustand.

In unserem Fall (s.Bild 4) gilt, mit $\Delta_j \gg \Delta_1$:

$$\omega_{j1} - \nu_1 = -\Delta_j$$

$$\omega_{21} - 2\nu_1 = \Delta_1$$

$$\omega_{2j} - \nu_1 = \Delta_j + \Delta_1 \approx \Delta_j$$

Die Zustände werden um die Energien $\Delta\Omega_i \cdot \hbar$ verschoben:

$$\Delta\Omega_1 = \frac{1}{2\hbar^2} \frac{|d_{1j}|^2 \overline{E_1^2} \omega_{j1}}{\omega_{j1}^2 - \nu_1^2} \quad (40)$$

$$\Delta\Omega_2 = \frac{1}{2\hbar^2} \frac{|d_{j2}|^2 \overline{E_1^2} \omega_{2j}}{\omega_{2j}^2 - \nu_1^2} \quad (41)$$

Die 2-Photonen-Verstimmung ist $\Delta' = \Delta_1 + \Delta\Omega_1 + \Delta\Omega_2$. Da aber $\omega_{j1} - \nu_1 = -\Delta_j$ und $\omega_{2j} - \nu_1 = \Delta_j$, und wenn über alle Zustände summiert wird, bekommt man:

$$\Delta' = \Delta_1 + \sum_j \frac{\overline{E_1^2}}{2\hbar^2 \Delta_j} \left[-\frac{|d_{1j}|^2 \omega_{j1}}{\omega_{j1} + \nu_1} + \frac{|d_{j2}|^2 \omega_{2j}}{\omega_{2j} + \nu_1} \right] \quad (42)$$

Wenn man die in diesem Experiment vorkommenden Werte einsetzt, bekommt man, für eine $4s - 12s$ Anregung:

$$\Delta' = \Delta_1 - 0.11 I_{\nu_1}$$

und für eine $4s - 10d$ Anregung:

$$\Delta' = \Delta_1 - 0.23 I_{\nu_1}$$

wobei I_{ν_1} (die Laserintensität) in Watt/cm^2 und Δ' in s^{-1} gegeben werden. Das heißt, daß die 2-Photonen-Resonanz bei $\Delta_1 = 0.11 I_{\nu_1}$, bzw. $\Delta_1 = 0.23 I_{\nu_1}$ liegt und die Position der leistungsverschobenen atomaren Niveaus angibt.^[7]

Man erkennt an Hand des Vorzeichens für Δ_1 , daß die 2-Photonen-Resonanz rot-verschoben liegt, das heißt, unterhalb der ungestörten atomaren Übergangsfrequenz.

Läßt man den Laser eingestellt auf die ungestörte 2-Photonen Resonanz und erhöht die Laserleistung bis und über den Sättigungspunkt hinweg, werden die atomaren Niveaus aus der ungestörten Resonanz heraus verschoben, so daß mit einer Abnahme des SHG-Signals zu rechnen ist.

^[7]Das gleiche Ergebnis bekommt man, wenn man die Laserfrequenz der Resonanz von oben nähert.

3. Experimenteller Aufbau

Wie im vorigen Kapitel schon erwähnt wurde, liegt das Ziel der Arbeit darin, Frequenzverdopplung in Atomstrahlen zu beobachten. Der Effekt ist jedoch so gering, daß ein einziger Atomstrahl nicht die zum Nachweis erforderliche Intensität bringen kann. Deswegen wurde zuerst eine Anordnung aus 50 in einer Reihe liegenden Ofenaustrittsöffnungen verwendet³⁸. Bei den ersten Messungen wurde jedoch die grundsätzliche Atomstrahlbedingung, daß die Öffnungsspalte viel kleiner als die mittlere freie Weglänge der Teilchen seien, nicht eingehalten. Ein SHG Effekt wurde zwar beobachtet, dieser stammte jedoch aus der Dampfwolke, die aus den viel zu großen Ofenöffnungen trat (die Spaltdimensionen waren $3 \times 1 \text{ mm}^2$, die mittlere freie Weglänge betrug jedoch bei 300°C , maximal 0.2 mm).

So wurde für das Experiment ein schmalbandiger gepulster (fourierbegrenzter) Laser, eine Atomstrahlanordnung und eine Meßanordnung verwendet, die im wesentlichen aus einem Monochromator mit einem Photovervielfacher am Austrittsspalt bestand. Der Monochromator sollte dazu dienen, die SHG Linie von anderen Spektrallinien, die durch die Laseranregung erzeugt wurden, zu trennen. Gemessen wurden die zeitintegrierte Laserintensität, die zeitintegrierte Signalintensität, die Atomstrahldichte und der Photoelektronenstrom, sowie auch die Polarisierung der elektromagnetischen Strahlung.

Aus den Ergebnissen der vorher gemessenen Abhängigkeit¹⁸ der SHG Energie von der Hauptquantenzahl n wurden die Zustände für die 2-Photonenanregung ausgesucht, die den höchsten Wirkungsgrad für die Frequenzverdopplung aufwiesen, in diesem Falle der $10d$ und der $12s$ Zustand. Als Material wurde Kalium verwendet. Durch die Schmalbandigkeit des Lasers konnten die einzelnen Niveaus selektiv resonant angeregt werden.

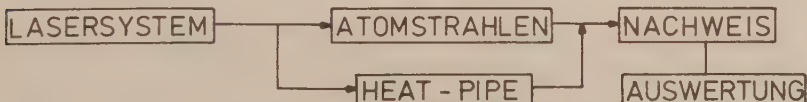


Abb. 5: Schematischer Aufbau des Experiments

Das Schema des Experiments ist auf Bild 5 zu sehen. Um sicherzugehen, daß das Lasersystem und die Nachweisapparatur korrekt auf die SHG Messung ansprechen würden, wurde parallel zum Atomstrahlensystem eine Heat-Pipe mit Kalium aufgebaut, womit die ersten Messungen durchgeführt wurden.

3.1. LASER

Um Laserpulse mit den gewünschten Eigenschaften, insbesondere Wellenlängenstabilität, Durchstimmbarkeit, Schmalbandigkeit und hoher Intensität zur Verfügung zu haben, wird ein schmalbandiger und frequenzstabiler Laserstrahl aus einem Dauerstrich-Laser in einen gepulst gepumpten Verstärker gekoppelt. Die austretenden Laserpulse haben die Wellenlänge des kontinuierlichen Strahles und eine Schmalbandigkeit, die aus der Pulsdauer resultiert (Fourierbegrenzung).

Der Farbstoff-Ringlaser (Spectra-Physics Modell 380D) wird von einem Argon-Ionen Laser (Spectra-Physics Modell 171) gepumpt und hat eine Ausgangsleistung von bis zu 700 mW bei $\lambda = 590 \text{ nm}$ im Einmodenbetrieb. Die Wellenlänge wird von der kommerziellen Einrichtung elektronisch über die Transmissionskurve eines temperatur- und druckstabilisierten Fabry-Perot Interferometers (FPI) mit einem freien Spektralbereich von 500 MHz überwacht, deren Ordnung von einem anderen FPI mit 10 GHz freien Spektralbereich kontrolliert wird (Bild 6). Der verwendete Farbstoff ist Rhodamin 6G. Die Linienbreite beträgt laut Hersteller 1 MHz und die Frequenz läßt sich über einen Bereich von 30 GHz kontinuierlich durchstimmen. Die Modenstruktur und Stabilität können mit einem 2 GHz Scanning FPI überwacht werden. Der stabilisierte Strahl durchläuft einen optischen Isolator, der aus einem Faraday-Rotator und einer $\lambda/2$ -Platte besteht und verhindert, daß Laserlicht aus dem gepulsten Laser zurückkommt und die Funktionsweise des Ringlasers stört.

Der Laserstrahl des Ringlasers wird in einem gepulstem Farbstofflaser weiter verstärkt. Der Farbstoffverstärker wird mit einer Repetitionsrate von 10 Hz von einem Nd:YAG Laser gepumpt (Quantaray Modell DCR-1), dessen Ausgangsstrahl durch einen K*DP-Kristall frequenzverdoppelt wurde. Der Verstärker be-

die aus dem Farbstoffverstärker kommen, haben deshalb im Querschnitt auch eine ringförmige Intensitätsverteilung.

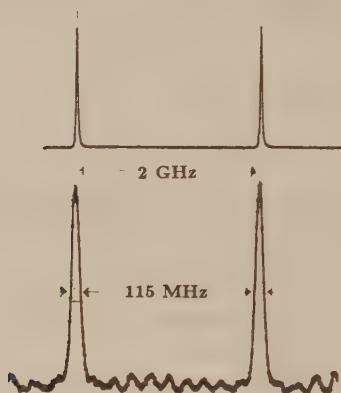


Abb. 7: Bandbreite der Laserpulse, aufgenommen mit einem 2 GHz FPI, wobei die Laserfrequenz langsam durchgestimmt wird. Im Vergleich dazu ist oben die Linienbreite zu sehen, wie sie erhalten wird, wenn nur der kontinuierliche Laserstrahl durchgestimmt wird; sie entspricht in diesem Fall der Apparatebreite des FPI, da die Linienbreite des Ringlasers deutlich darunter liegt.

So erhält man bei 5 mW eingekoppelter kontinuierlicher Strahlung am Ausgang des Farbstoff-Verstärkers Pulse mit einer Energie bis zu 20 mJ. Diese müßten laut Hersteller bei einer Pulslänge von 6-7 ns eine Linienbreite von ≈ 150 MHz aufweisen.

Tatsächlich aber ist die gemessene Pulsdauer etwas länger (≈ 8 ns) und die Pulse sind zeitlich stark strukturiert. Daher wurde auch die Bandbreite gemessen (Bild 7). Sie ergab ≈ 115 MHz, was also für die gemessene Pulsdauer eine quasi-Fourier-Begrenzung bedeutet. Die Laserpulse haben jedoch eine stark strukturierte zeitliche Form. Dies kommt dadurch zustande, daß mehrere Moden gleichzeitig im Nd:YAG Resonator anschwingen und interferieren. Eine Methode, glatte Pulse unter Verwendung eines ELN (Electronic Line Narrowing) zu bekommen,

wobei durch elektronisch kontrolliertes Öffnen des Güteschalters eine einzige Mode verstärkt wird, lieferte erfahrungsgemäß nicht immer glatte Pulse. Da das ELN zusätzlich noch starke elektromagnetische Störungen hervorrief, wurde auf seine Verwendung verzichtet. So ergaben sich starke Intensitätsschwankungen, die sich auch teilweise auf die Ausgangspulse des Verstärkers übertrugen. Solch ein Verhalten kann bei nichtlinearen Effekten zu noch größeren Schwankungen führen und muß unter Umständen bei der Auswertung berücksichtigt werden.

Die Bestimmung der Wellenlänge erfolgt über eine Jod- Absorptionszelle. Das aufgenommene Spektrum wird mit einem Jod-Atlas³⁹ verglichen um Linien und Wellenlängen zu identifizieren. Eine grobe Einstellung der Wellenlänge erfolgt über ein sogenanntes Lambda-Meter, das aus einem Michelson-Interferometer besteht; die Interferenzstreifen der unbekannten Wellenlänge werden zusammen mit denjenigen einer bekannten Wellenlänge (in diesem Fall eines He-Ne Lasers) gezählt. Das Verhältnis der beiden Werte, multipliziert mit der bekannten Wellenlänge, gibt die zu bestimmende Wellenlänge an.

Damit die Störpulse, die auf Grund der elektrischen Entladungen für die Blitzlampen entstehen, nicht störend auf die Elektronik wirken, ist die gesamte Lasereinrichtung in einer Metallkabine untergebracht.

3.2. DAS ATOMSTRAHLENSYSTEM

Ziel des Experiments war, die Frequenzverdopplung mit Hilfe einer Atomstrahlanordnung zu untersuchen. Um eine Verstärkung des Effekts zu bekommen, wurden viele Atomstrahlen nacheinander verwendet. In einer Heat-Pipe oder Zelle spielen Stöße eine große Rolle. Dies ist nicht der Fall für Atomstrahlen. Das heißt, man kann hohe Dichten mit geringeren Stoßraten erzeugen.

Um hohe Dichten in einem Metaldampf zu erzeugen, muß man den Dampfdruck im Ofen entsprechend hoch halten. Hohe Dichten im Ofen entsprechen aber einer kleinen freien Weglänge. Dies stellt eine wichtige Bedingung für die Erzeugung von Atomstrahlen dar, nämlich, daß die Ofenöffnungen viel kleiner als die mittlere freie Weglänge sein sollen.

Wenn man jedoch schmale, lange Kanäle als Düsen am Ausgang des Ofens nimmt, kann die Bedingung $a \ll \bar{\lambda}$ auf $a \approx \bar{\lambda}$ gelockert werden, wenn $a \ll l$ ist, wobei λ die mittlere freie Weglänge, $\bar{\lambda}$ der Mittelwert von λ über die Länge l , a der Durchmesser und l die Länge des Kanals sind.

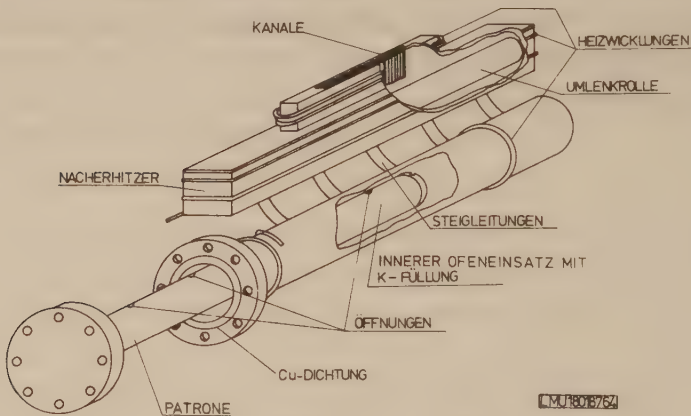


Abb. 8: Ofen und Nachheizer System

Das Atomstrahlensystem (s.Bild 8) besteht aus einem Ofen, der mit einem Nachheizer verbunden ist. Der Ofen wird mit einer mit einem Alkali gefüllten

(in diesem Fall Kalium) Patrone versehen, die kleine Austrittsöffnungen hat, wodurch der Alkali-Dampf entweichen kann. Die Patronenkammer ist mit dem Nachheizer verbunden, auf dem auch die Düsen angebracht sind. Der Ofen und das Nachheizer-Düsen-System werden durch eine Widerstandsheizung geheizt, die mittels Ni-NiCr-Thermoelementen von zwei Proportional-Differential-Temperaturreglern geregelt wird, um die eingestellten Solltemperaturen zu halten. So kann die Düsentemperatur weitgehend unabhängig von der Ofentemperatur eingestellt werden.

Die Düsen bestanden zuerst aus den schon erwähnten $3 \times 1 \text{ mm}^2$ -Schlitzen, die sich als ungeeignet erwiesen.

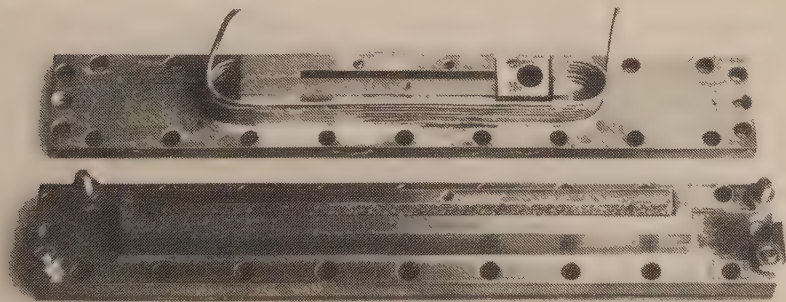


Abb. 9: Die zwei Düsenanordnungen. Die Untere enthält ≈ 800 Stecknadeln, die Obere ≈ 800 Edelstahlkapillare, die in den jeweiligen Schlitzen untergebracht sind.

Danach wurden in einem 1. Versuch ca. 800 Nadeln mit etwa 0.7 mm Durchmesser und 16 mm Länge in einen $3 \text{ mm} \times 128 \text{ mm}$ -Schlitz dicht gebündelt eingespannt. Diese ergaben eine lange Zone von homogen angeordneten Atomstrahlen (s. Bild 9). Diese Anordnung erwies sich erfolgreich. Um die Kollimation der Atomstrahlen nochmals zu verbessern, wurden Edelstahlkapillare (Außendurchmesser 0.3 mm , Innendurchmesser 0.1 mm , Länge 20 mm) genau so gebündelt und in einem $1.85 \text{ mm} \times 52 \text{ mm}$ -Schlitz gepreßt untergebracht. Bei den Nadeln ergab sich zuerst eine offene Fläche von $\approx 83 \text{ mm}^2$, danach wurde die Länge auf 40 mm verkürzt (auf eine Länge bei der die Laserintensität auf Grund

der Fokussierung um maximal einen Faktor 4 variierte) so daß nur noch 26 mm^2 übrig blieben. Bei den Kapillaren betrug die offene Fläche 42 mm^2 .

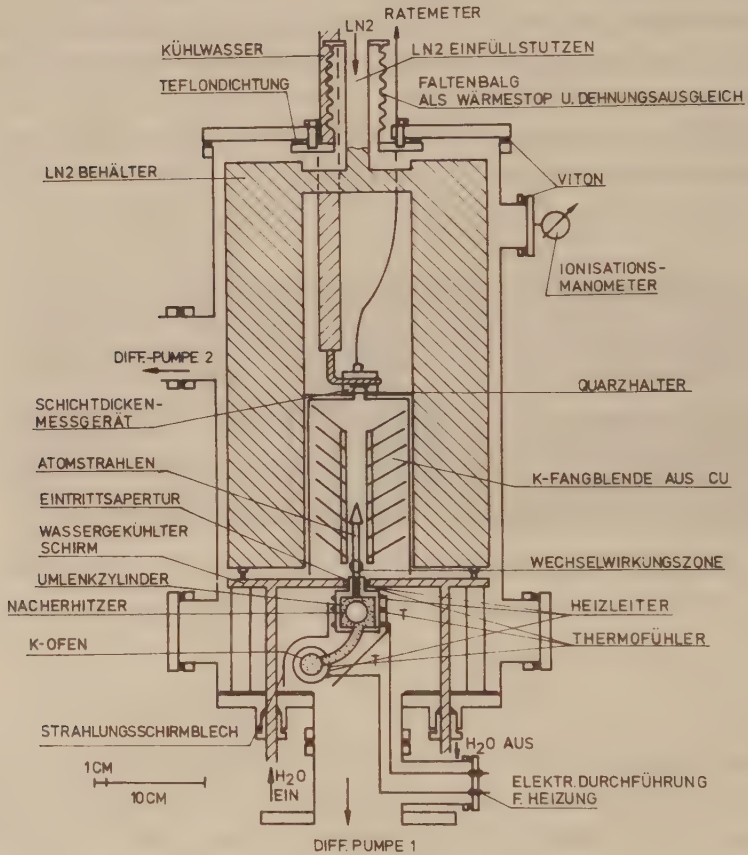


Abb. 10: Querschnitt durch die gesamte Apparatur

Der Atomstrahl-ofen ist in einem Vakuumtopf untergebracht, der außerdem noch einen Stickstoff-Kühlmantel enthält. Die Halterung des Ofens ist was-

sergekühlt und dient zugleich als Wärmeschild (s. Bild 10). Das Vakuum wird mittels zwei Diffusionspumpen und einer Vorpumpe hergestellt und beträgt $10^{-5} - 10^{-6}$ mbar.

3.3. DIE MESSAPPARATUR

3.3.1. WELLENLÄNGENBESTIMMUNG

Die Wellenlänge des Lasers wird grob über das λ -Meter eingestellt. Die Feineinstellung erfolgt über eine Jod-Absorptionszelle. Das frequenzverdoppelte Licht wird kollinear mit dem Laserstrahl erzeugt und durchläuft einen 1.5 m Jobin-Yvon Monochromator zur Analyse. Der Monochromator ist mit einem holographischen Gitter (1200 Striche/mm) versehen und hat eine Auflösung $R=15000$. Am Austrittsspalt befindet sich ein Photovervielfacher (1P28) zur Aufnahme der Lichtpulse.

3.3.2. BESTIMMUNG DER LICHTINTENSITÄT

Die Laserpuls-Intensität wird von einer Photodiode gemessen, die auf einen Laserreflex gerichtet ist. Da die starken zeitlichen Strukturen des Laserpulses nicht mehr von der Photodiode (Anstiegszeit 0.8 ns) verfolgt werden können, wird der Laserpuls integriert und aus der Energie mittels der bekannten Pulslänge die Leistung berechnet. Für die Bestimmung der Intensität in der Wechselwirkungszone, also im Fokus der Einkoppellinse ($f=200$ mm), wurde die Strahl-Taille folgendermaßen bestimmt: In den Fokus der Linse wurde eine dünne Folie gehalten und ein Loch mit steigender Laserleistung eingebrannt. Der Lochdurchmesser wurde dann über die Beugungsfigur des abgeschwächten CW-Lasers bestimmt und betrug $\approx 200 \mu\text{m}$. Es wurde diese Methode angewandt und nicht die bekannte Formel $d_0 \approx 2f\lambda/D$ (wobei λ die Wellenlänge, D der Durchmesser des Laserstrahles auf der Linse, f die Brennweite und d_0 das zweifache des Strahldurchmessers im Fokus ist) da die Formel nur für gaussförmige Strahlen gilt, was bei diesem Experiment

nicht der Fall war.^[8] Tatsächlich ergab die Formel $d_0 = 40 \mu m$, anstatt der gemessenen $200 \mu m$.

Die Signalintensitäten werden durch den mit 50Ω abgeschlossenen Photovervielfacher gemessen. Die großen Streuungen in Laserpulsintensität und -Form (also Leistung und Energie) führten zu noch größeren Schwankungen in den nichtlinearen Effekten, so daß eine zeitliche Mittelung, wie sie beim Boxcar-Integrator durchgeführt wird, einen Informationsverlust bedeutete. Hinzu kommt, daß der Boxcar-Integrator bei 10 Hz Pulsrepetitionsrate vom Nullpunkt wegwandert, und daß die gleichzeitige Messung mehrerer Kanäle nicht möglich ist. So wurde für ein Puls-für-Puls Meß- und -Auslese-Verfahren entschieden. Die gemessenen Signale (wie z.B. SHG-, Idler- und Laserpuls-Energien, Photoelektronenstrom zusammen mit langsam variierenden Größen wie Ofentemperatur und Atomstrahldichte) werden dann einzeln integriert und über einen AD-Wandler von einem Computer ausgewertet und gespeichert.

Die Pulssignale werden von Le-Croy-Integratoren integriert, die über entsprechende Zeitverzögerungen vom DCR-1A Nd:YAG Laser getriggert werden. Über Pulsgeneratoren werden die angemessenen Zeitfenster für die Integration erzeugt (s. Bild 11). Die Le-Croy Integratoren liefern so am Ausgang Gleichspannungen zwischen -5 und +10 Volt. Der DCR 1A liefert TTL-Pulse synchron mit dem Güteschalter (Q-Switch), so daß der Commodore 8032 Tischrechner die digitalisierten Gleichspannungen im seriellen Ablauf ablesen und als entsprechende BASIC-Variablen speichern kann (s. Bild 11).

Die Intensität des Lasers kann mit abschwächen (Graufilter) variiert werden. Die Energie der Laserpulse wird mit einem "Power Meter" gemessen.

^[8]Die ringförmige Intensitätsverteilung senkrecht zur Laserstrahlachse hat sicherlich zur Folge, daß der Beitrag der Atome innerhalb der Strahl-Taille unterschiedlich ist. Dennoch wurde zunächst im Wechselwirkungsvolumen die Intensität durch den Mittelwert (Gesamtleistung/Gesamtfläche) genähert.

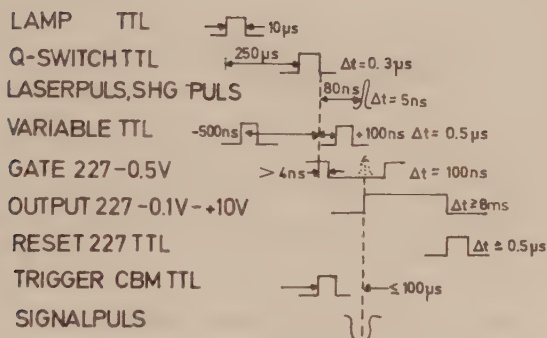
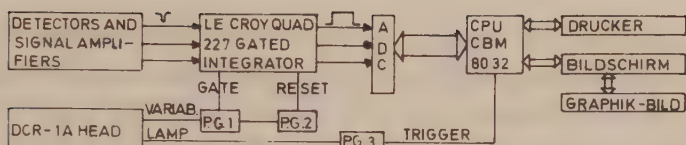


Abb. 11: Oben: Schema der Nachweiselektronik. Unten: Zeitlicher Ablauf der Signal- und Steuerpulse.

3.3.3. TEILCHENDICHTE IM ATOMSTRAHL

Eine Methode, die Dichte im Atomstrahl über die optische Absorption der $4s-4p$ Linien einer Kalium-Entladungslampe zu bestimmen, scheiterte an der großen Breite der Lampenlinien und an der geringen Dopplerbreite der Atomstrahlen. Ein breitbandiger Nachweis (Aufnahme der Linien mit einem Monochromator) war deshalb nicht möglich, weil die schmale Absorptionslinie viel schwächer war als die Quelle und so unbemerkt blieb. Ein schmalbandiger Nachweis mit einem Fabry-Perot Interferometer, der innerhalb des schmalen Absorptionsprofils stattgefunden hätte, scheiterte an der geringen spektralen Intensität der Lampenlinien und am damit unzureichenden Meßsignal.

So wurde entschieden, die Dichte der Atomstrahlen über die zeitliche Massenanlagerungsrate zu bestimmen. Dazu wurde ein Schwingquarz verwendet, dessen Eigenfrequenz sich proportional zu seiner Gesamtmasse ändert. Das Gerät ist

wohlbekannt und wird in jedem Betrieb, in dem dünne Schichten aufgedampft werden, zur Bestimmung der Schichtdicken eingesetzt. In diesem Fall handelte es sich um ein Schichtdickenmessgerät von Balzers (Modell QSG 201D) und ein dazu gehörendes Ratemeter (QRG 201B), mit dem die Aufdampfrate bestimmt werden konnte.

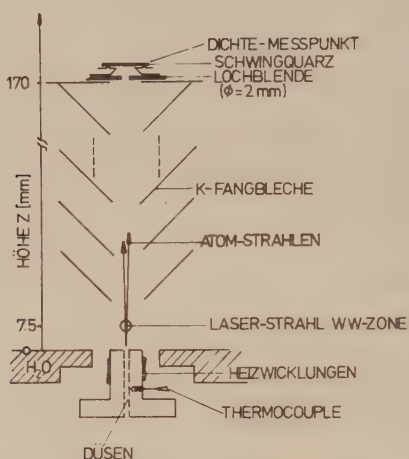


Abb. 12: Querschnitt durch die Apparatur; sichtbar sind die Wechselwirkungszone und die Dichtemeßzone.

Das Quarzplättchen befindet sich senkrecht zum Atomstrahl ungefähr 170 mm oberhalb der Wechselwirkungszone (s. Bild 10, Bild 12). Mit Kenntnis der Atomstrahlkollimation (oder Raumwinkel) kann die Dichte in der Wechselwirkungszone bestimmt werden. Die Bestimmung der Teilchendichte im Atomstrahl ist jedoch nicht trivial (s. Anhang). Der Quarzhalter kann auf- und abgefahren sowie transversal zu den Atomstrahlen verschoben werden, um die Kollimation zu messen. Um die Einsatzdauer eines Quarzplättchens zu verlängern wurde der Atomstrahlfluß mit einer Blende reduziert, die durch einen Elektromagneten geöffnet und geschlossen werden konnte, da die Dichte-Bestimmung nicht kontinuierlich erfol-

gen muß . Der Linearitätsbereich des Quarzes beträgt 30 kHz (bei 5 MHz Eigenfrequenz), was bei einer Aufdampfrate von 1000 Hz/s, die z.B. unmittelbar über der Wechselwirkungszone herrschte, knappe 30 Sekunden Meßdauer bis zum nächsten Quarzwechsel gestatten würde. Aus diesem Grund wurde der Quarzhalter in 170 mm Entfernung von der Wechselwirkungszone angebracht. Eine weitere Verlängerung der Meßperiode wurde durch die oben erwähnte Blende erreicht. Für den Schwingquarz gilt:

$$\frac{\Delta f}{f_q} = \frac{\Delta m}{M_q} \quad (43)$$

wobei f_q die Eigenfrequenz (Hz) und M_q die Masse des unbeschwerten Quarzes sind, Δf die Änderung der Schwingfrequenz des Quarzes, und Δm die Änderung der Masse des Quarzes, in diesem Fall die Masse der den Quarz bedeckenden Fremdschicht. Da

$$M_q = \rho_q F_q d \quad (44)$$

wobei ρ_q die Massendichte des Quarzes in g/cm^3 , F_q die Fläche (in cm^2) und d die Dicke des Quarzes in cm sind, wird

$$\frac{\Delta f}{f_q} = \frac{\Delta m}{\rho_q F_q d}$$

Nimmt man an, daß der Atomstrahl senkrecht auf eine Teilfläche F_A auf das Quarz, mit einer Teilchendichte N , mittlerer Geschwindigkeit $\bar{v}$ und Teilchenmasse m_A trifft, so ist die Rate, mit der sich die Fremdmasse auf das Quarz deponiert

$$\frac{d}{dt}(\Delta m) = N \bar{v} F_A m_A \quad (45)$$

Wenn man die Rate, mit der sich die Frequenz des Quarzes ändert, also $\frac{d}{dt}(\Delta f)$, mißt, so hat man

$$\frac{\frac{d}{dt}(\Delta f)}{f_q} = \frac{\frac{d}{dt}(\Delta m)}{\rho_q F_q d} = \frac{N \bar{v} F_A m_A}{\rho_q F_q d} \quad (46)$$

Damit bekommt man die Dichte N der Teilchen im Atomstrahl,

$$N = \frac{\frac{d}{dt}(\Delta f)}{\bar{v}} \frac{\rho_q F_q d}{f_q F_A m_A} \quad (47)$$

Das Ratemeßgerät (Flußmesser), mit dem die Frequenzänderungsrate des Schwingquarzes gemessen wurde, lieferte bei den Messungen typischerweise bis zu 40 Hz/s, bei einer Genauigkeit von 0.1 Hz/s (Meßbereich für die Teilchendichte von $\approx 3 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-3}$ bis $\approx 2 \cdot 10^{14} \text{ cm}^{-3}$). Der Meßbereich würde sich zusätzlich durch Verwendung von Lochblenden und Verstellung der Meßhöhen auf 10^9 cm^{-3} bis 10^{17} cm^{-3} erweitern lassen.

3.3.4. PHOTOELEKTRONENSTROM

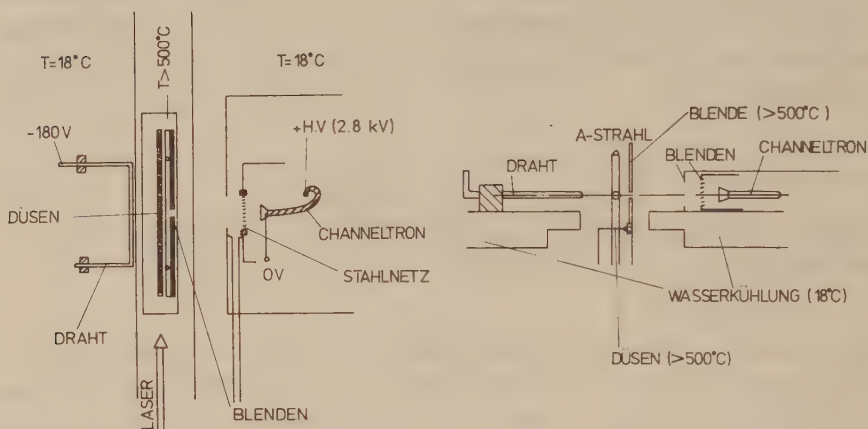


Abb. 13: Channeltron-Anordnung zur Messung der Photoelektronen, mit heißer Blende um ein Zudampfen zu verhindern.

Die Messung des Photoelektronenstromes gelang nur bei geringen Teilchendichten, da bei höheren Dichten, bei denen SHG zu beobachten war, die Photoelektronenmessanordnungen zudampften. Von den verschiedenen Anordnungen, die versucht wurden, erwies sich die in Bild 13 abgebildete als die Beste. Das Hauptproblem bei hohen Dichten waren die Kurzschlüsse, die an den Elektroden und an sonstigen Kontaktstellen auftraten, sobald die Vorspannungen angelegt wurden.

An dieser Stelle muß darauf hingewiesen werden, daß das hier verwendete geschlossene Channeltron nicht im gesamten dynamischen Bereich die gleiche Proportionalität zwischen Anzahl der Elektronen und Ausgangsstrom liefert. Bei der hier verwendeten Anordnung wurde es jedoch noch im Linearitätsbereich benutzt.

3.3.5. DER HEAT-PIPE OFEN

Der Heat-Pipe Ofen besteht aus einem Stahlrohr (72 cm lang, 2,5 cm im Durchmesser), das an der Innenwand mit einem feinen und groben Maschendraht, dem Docht, ausgelegt ist.

Das Rohr wird in der Mitte auf einer Länge von 10 cm über die Außenwand mit Heizleitern geheizt und besitzt an den wassergekühlten Enden Fenster, durch die das Laserlicht treten kann. Die Heat-Pipe wird mit Edelgas gefüllt und das zu verdampfende Material befindet sich im Dochtbereich. Das Metall verdampft in der geheizten Zone, kühlt an den Enden der Dampfzone durch Wärmeaustausch mit dem Edelgas und mit den Wänden ab und fließt aufgrund der Kapillarität zurück zur Verdampfungszone. Ein Heat-Pipe Ofen bietet einige Vorteile gegenüber einer normalen Dampfzelle: erstens bleiben die Fenster sauber, da das Metall nicht bis dahin gelangen kann; zweitens kann man den Dampfdruck über einen großen Bereich variieren. In diesem Fall wurde die Heat-Pipe bewußt als reine Dampfzelle verwendet, um den SHG-Effekt zu beobachten, ohne jedoch Wert darauf zu legen, die Dichte oder die Länge der Dampfzone genau zu bestimmen.

4. Experimentelle Ergebnisse

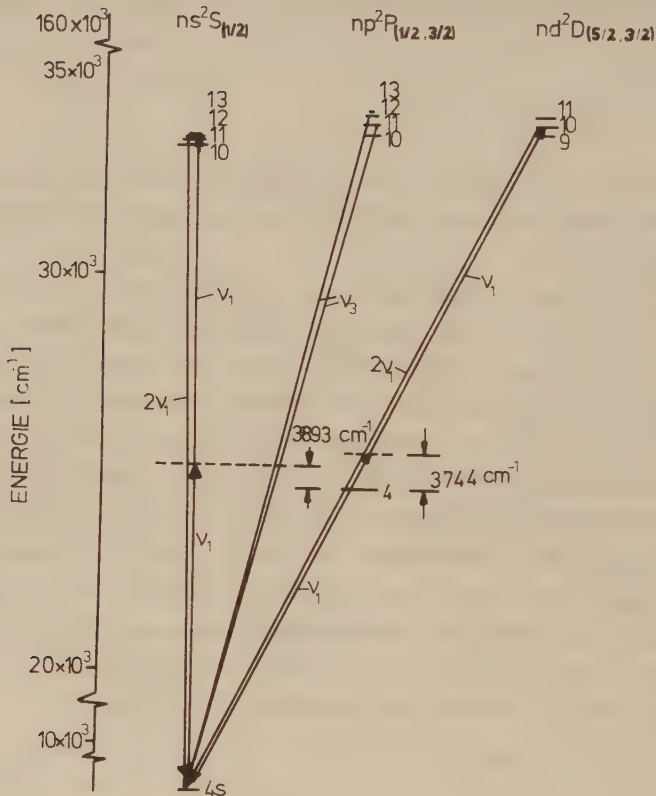


Abb. 14: Schema der in dieser Arbeit verwendeten 2-Photonen Anregungen von Kalium. Zusätzlich sind die Energie- Differenzen der 1-Photon Einstrahlung zum nächstliegenden Niveau ($4p$) in Wellenzahlen eingetragen.

Für die Experimente wurden die $10d$ und $12s$ Zustände ausgesucht, da diese

den höchsten Wirkungsgrad zu haben scheinen¹⁸.

Auf dem Bild 14 ist das Anregungsschema mit den wichtigsten im Experiment vorkommenden Linien zu sehen.

4.1. MESSUNGEN MIT DER HEAT-PIPE

Der Laser wurde zunächst auf den 2-Photonen Übergang $4s - 10d$ abgestimmt. Als erste Messung wurde die SHG-Energie im Heat-Pipe-Ofen in Abhängigkeit der Ofentemperatur gemessen.

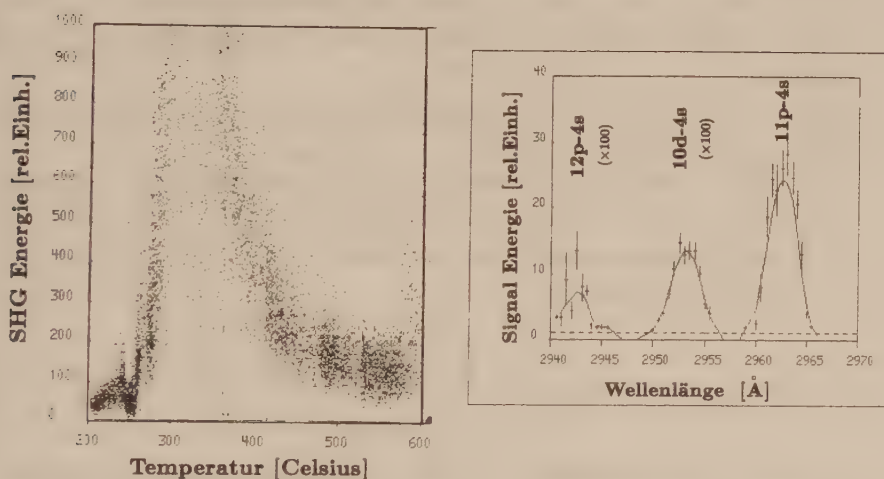


Abb. 15: Heat-Pipe Messung. Links das Phasenanpassungsverhalten bei Änderung der Heat-Pipe Temperatur. Rechts die Monochromator-Messung der erzeugten Linien.

Man beobachtet qualitativ das Phasenanpassungsverhalten (s. Bild 15 links). Das SHG-Signal war erst dann zu sehen, wenn mit einer $f = 200\text{ mm}$ -Linse in den Heat-Pipe-Ofen fokussiert wurde. Eine Einstrahlung mit zirkular polarisiertem Licht erzeugte keinen Effekt. Als Bemerkung muß hier hinzugefügt werden,

daß die Temperatur-Achse in diesem Fall (Bild 15 links) keine quantitative Information über die Teilchendichte liefert.

Im rechten Bild sieht man das Spektrum der erzeugten Linien, mit dem Monochromator aufgenommen. Es sind drei Linien zu erkennen. Sie können als die $12p - 4s$, $10d - 4s$ (SHG), und $11p - 4s$ Emissionen vom Kalium identifiziert werden. Die $11p - 4s$ Linie wird auch Idler-Linie im SHRS (Stimulated Hyper-Raman Scattering) Prozess genannt, wobei die Stokes-Linie dem $10d - 11p$ Übergang entspricht, dessen Wellenlänge in diesem Fall bei $84.31 \mu\text{m}$ liegt. Da der Energie-Abstand zwischen dem $10d$ und dem energetisch höher gelegenen $12p$ -Niveau einer Wellenlänge von $70.74 \mu\text{m}$ entspricht, was gegenüber dem Stokes-Photon eine Verstimmung von 682 GHz hat (22.8 cm^{-1}) hat, kann das Stokes-Photon kohärent zur 2-Photonen-Anregung addieren und mit einer quasi-resonanten Verstärkung die $12p - 4s$ -Linie erzeugen.

Alle drei Linien waren auf dem Oszilloskop, das eine 10 ns Auflösung hatte, gleichzeitig mit dem Laserpuls zu sehen.

Es wurde in der Heat-Pipe auch ein ähnlich starkes SHG Signal vom $12s$ -Niveau und ein schwaches SHG-Signal vom $11p$ -Niveau beobachtet.

Die Stokes-Linien lagen außerhalb des Meßbereichs des Monochromators und konnten nicht nachgewiesen werden.

4.2. MESSUNGEN MIT DEN ATOMSTRAHLEN

Es wurde SHG bei resonanter 2-Photonen Anregung der $12s$ und $10d$ Zustände sowohl mit der Nadel- als auch mit der Kapillarenanordnung gemessen.

Die ursprüngliche Länge der Nadeln-Anordnung war 128 mm . Sie wurde auf 40 mm reduziert, um den Kalium-Verbrauch zu verringern. Dabei wurde nur eine geringe Änderung des Signals beobachtet. Direkt ließ sich kein Vergleich beider Längen durchführen, da beim Umbau (bzw. bei der Verringerung der Wechselwirkungslänge) die übrigen Parameter nicht exakt unverändert blieben.

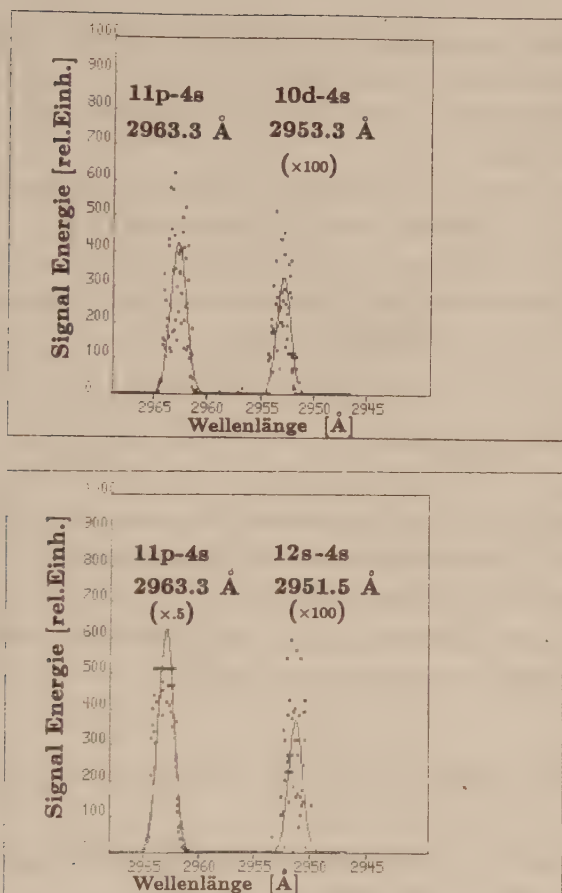


Abb. 16: Monochromator-Messung der erzeugten Linien : SHG-Linien und 11p-4s (Idler)-Linie, erzeugt bei den jeweiligen Anregungsschemata (Bild 14).

4.2.1. IDENTIFIZIERUNG DER LINIEN

In beiden Fällen konnten die Linie der 2.Harmonischen und die Idler-Linie identifiziert werden (s.Bild 16). Die Idler-Linie setzte schon bei Teilchendichten ein, die kleiner als 10^{12} cm^{-3} waren, die SHG-Linie dagegen erst ab 10^{13} cm^{-3} . Die Spalte des Monochromators (Eingangs- und Austrittsspalt) wurden auf $3 \mu\text{m}$

gesetzt, so daß die Linien noch gut aufgelöst wurden. Der Monochromator ließ bei dieser Einstellung ungefähr 1% der Strahlenergie durch.

Es wurde qualitativ kein Unterschied zwischen der Nadel- und der Kapillaren-Anordnung beobachtet.

Eine deutliche Verringerung der SHG-Energie wegen der Reduzierung der Stöße in der Kapillaren-Anordnung konnte nicht beobachtet werden.

Die Positionen der Linien entsprechen den ihnen zugeordneten Übergängen und liegen innerhalb des Meßfehlers. Als nächstes wurde das Verhalten der Linien bei Durchstimmen des Anregungslasers untersucht.

4.2.2. DURCHSTIMMKURVEN

Es war zu erwarten, daß bei den gemessenen 2-Photonen-Effekten wegen der hohen Leistungen eine Leistungsverbreiterung vorhanden sein mußte. Die Linienbreite entspricht dann der 2-Photonen Rabifrequenz.

Es wurde nicht direkt die Linienbreite der emittierten Strahlung gemessen, sondern die Durchstimmkurven aufgenommen^[9].

4.2.2.1. DURCHSTIMMKURVE FÜR DIE FREQUENZVERDOPPLUNG

Bild 17 zeigt das Durchstimmverhalten bei zwei verschiedenen Laserleistungen und Einstrahlung auf den $4s - 12s$ Übergang .

Die 2-Photonen Rabifrequenz für beide Leistungen ist 18 GHz und 5 GHz, entsprechend für 6.1 GW/cm^2 und 1.5 GW/cm^2 . Man sieht daß eine Erhöhung der Leistung nur eine Verbreiterung der Durchstimmkurve zur Folge hat, daß also eine Sättigung in der SHG-Energie auftritt. Dies wird später auch noch aus der Laserenergie-Abhängigkeit ersichtlich.

^[9] Es wäre experimentell sehr aufwendig gewesen, die Linienbreite direkt zu messen. Dafür wäre die Herstellung schmalbandiger Filter nötig gewesen, um einzelne Linien durchzulassen um dann in einem UV Fabry-Perot Interferometer die Linienbreite zu bestimmen.

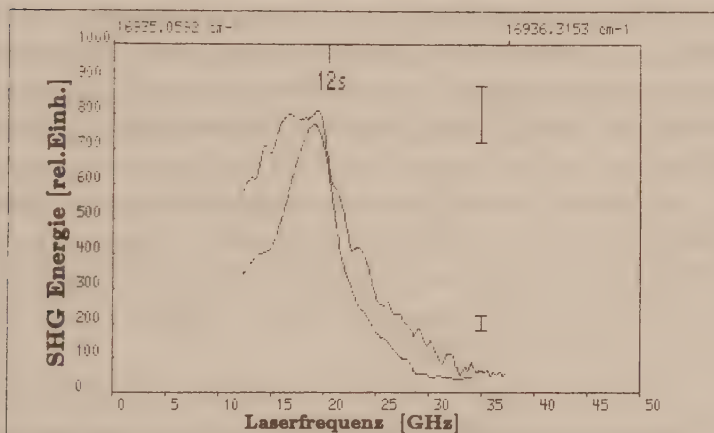
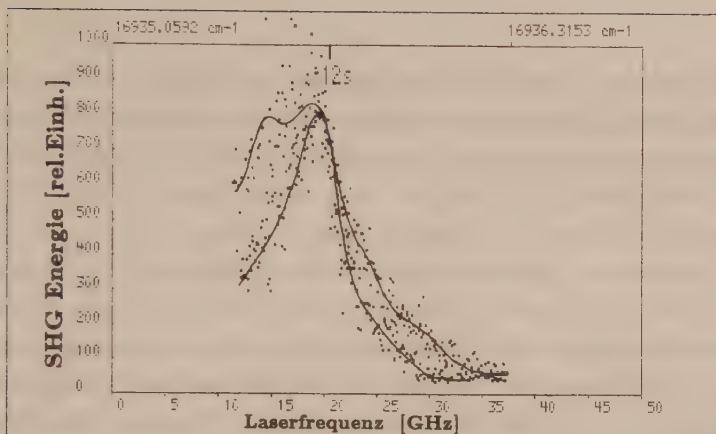


Abb. 17: Erzeugung der Zweiten Harmonischen in Abhängigkeit der Laserfrequenz-Verstimmung von der $4s$ - $12s$ Zweiphotonen-Resonanz, für zwei verschiedene Laserintensitäten. Die schmale Linie entspricht einer Laserleistung von $\approx 1.5 \text{ GW/cm}^2$, die der breiten Linie einer Laserleistung von $\approx 6.1 \text{ GW/cm}^2$. Die Einzelmessungen sind im unteren Bild weggelassen. Die Fehlerbalken im unteren Bild entsprechen dem mittleren Fehler für die gemittelten Meßwerte. Die Zweiphotonen-Resonanzfrequenz zum $12s$ Zustand ist am oberen Rand angegeben (ebenfalls die Wellenzahl der Laserfrequenz). Oberes Bild: Glättungsmethode (a). Unteres Bild: Glättungsmethode (b) (s. Text). Die Teilchendichte im Atomstrahl war bei dieser Messung $N \approx 1.1 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3}$.

Beide Kurven zeigen, daß die Durchstimmkurven leistungsverbreitert sind, und daß die Breite der Kurven größenordnungsmäßig der Rabifrequenz entspricht. Wenn man die Leistungsverchiebung aus der Formel für $\Delta'(42)$ errechnet, so liefert diese 0.2 GHz für 1.5 GW/cm^2 , und 0.9 GHz für 6.1 GW/cm^2 , in die niederfrequente Richtung des ungestörten atomaren Übergangs $4s - 12s$. Wie auf Bild 17 zu sehen ist, liegen die Maxima der Durchstimmkurven zur niederenergetischen Seite des Übergangs, und zwar um einen Wert, der in Einklang mit dem theoretisch berechneten ist. Eine genauere Abschätzung ist schwierig, da der Fehler bei der Bestimmung der Laserintensität (Messung der Strahl-Taille) wegen der quadratischen Abhängigkeit groß sein kann (50%). Dazu kommt noch, daß innerhalb des Strahldurchmessers die Laserintensität nicht konstant ist, so daß die atomaren nichtlinearen Beiträge stark unterschiedlich sein können.

Zusätzlich zur Linienverschiebung und Verbreiterung wurde eine dynamische Stark-Aufspaltung experimentell schon in 3-Niveau Systemen beobachtet⁴⁷. In Experimenten mit Zwei-Photonen-Anregung^{44,43} wurde die Stokes-Intensität in Abhängigkeit der Pumplaser-Verstimmung bei Cd und Na gemessen und eine Abnahme dieser Intensität bei der 2-Photonen-Resonanz gefunden. Die Breite der gemessenen Linienstruktur war 20-30 mal größer als die des Pumplasers und als die Dopplerbreite des $|2\rangle\text{-}|3\rangle$ Übergangs (s. Schema in Bild 1). Der Intensitätsabfall der Stokes und Idler Wellen in Resonanz wurde von Guzman et. al.²¹ als eine dynamische Stark-Aufspaltung erklärt.

Obwohl die Meßpunkte in Bild 17 wegen der Intensitätsschwankungen des Lasers stark streuen, ergibt eine normale statistische Auswertung mit zwei verschiedenen Methoden eine Aufspaltung für die Kurven mit der höheren Intensität (diese war auch die höchste Intensität, die erreicht werden konnte, $\approx 6.1 \text{ GW/cm}^2$ ^[10]). Eine Glättungsmethode, (a) paßt intervallmäßig Polynome 2. oder 3. Grades an die Meßwerte an, berechnet dann für die jeweiligen Intervalle Schätzwerte, die dann mit Splines 3. Grades zu einer Kurve verbunden werden. Die zweite Methode, (b)⁵⁰ legt durch alle Punkte direkt einen Spline 3. Grades, der aber nicht durch die Punkte geht, sondern abhängig von einem Glättungsparameter S eine mehr

[10] Eine stärkere Fokussierung zu erhalten, um die Intensität in der Wechselwirkungszone zu erhöhen, war nicht möglich, da sich dafür die Linsen innerhalb der Vakuum-Apparatur befinden hätten müssen

oder weniger glatte Kurve durch die Meßpunkte legt. Es ist bekannt, daß eine dynamische Stark-Aufspaltung nicht bei Ein-Photon-Übergängen auftritt; daher ist bei der Interpretation der hier gemessenen Aufspaltung Vorsicht angebracht.

4.2.2.2. DIE IDLER-LINIE

Die Dipol-erlaubte $11p-4s$ Linie, die im Schema in Bild 1 dem $|3\rangle - |1\rangle$ -Übergang entspricht, wird in dieser Arbeit Idler-Linie genannt obwohl die $\chi^{(5)}$ -induzierte SHRS-Linie schwer von einer $\chi^{(3)}$ -induzierten 4-Wellen-Mischung erzeugten Linie zu unterscheiden ist⁸. Sie wurde innerhalb der Auflösung des Oszilloskops (10 ns) gleichzeitig mit dem Laserpuls gemessen und, wie später gesehen werden soll, exponentiell verstärkt. Diese Eigenschaft und die Unabhängigkeit von der Phasenanpassung, die bei der Heat-Pipe auch festgestellt wurde, bestätigen die Identifizierung als Idler-Linie eines SHRS-Prozesses. Sie hatte, wie die SHG-Linie, die gleiche Kollimation wie der Laserstrahl, setzte aber schon bei sehr geringen Teilchendichten ein und war um Größenordnungen stärker als die SHG-Linie.

Ein Durchstimmen der Laserfrequenz um die 2-Photonen-Resonanz mit dem $4s - 10d$ Übergang ergab, bei Beobachtung der $11p-4s$ Linie, eine relativ schmale (im Vergleich zur SHG-Linie), leicht rot-verschobene (um etwa 1 GHz) asymmetrische Kurve (s.Bild 18). Die Rotverschiebung und die Asymmetrie haben denselben Ursprung wie bei der Erzeugung der Zweiten Harmonischen bei der Anregung des $12s$ Zustandes. Die Asymmetrie ist wahrscheinlich auf das $4p$ Zwischenniveau zurückzuführen. Es war zu erwarten, daß die Linie nach höheren Energien hin stärker abnimmt.

Die Tatsache, dass die Idler-Linie weniger breit als die SHG-Linie ist, hat 2 Gründe:

- 1) Eine resonante Leistungsverbreiterung findet bei der relativ geringen Stokes und Idler Leistungen (die bei diesen Teilchendichten noch nicht gesättigt sind), nicht statt.
- 2) Die Verstärkung der Linie ist exponentiell und damit auch der Leistungsabfall zu den Flanken des Verstärkungsprofils der Linie hin ($\mathcal{L}$ -Faktor in α in Formel (37)).

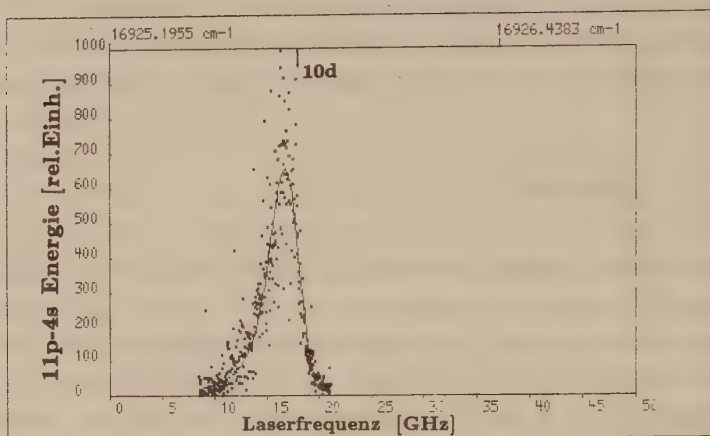


Abb. 18: 11p-4s (Idler)-Linie in Abhängigkeit der Laserfrequenz für den 4s-10d 2-Photonen Übergang. Dabei wird der 4s-10d-Übergang angeregt und der 11p-4s-Übergang im Monochromator beobachtet. Die Teilchendichte im Atomstrahl ist $N \approx 6.6 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$.

Die Idler-Linie wird durch spontanen Zerfall initiiert.

4.2.2.3. DREI-PHOTONEN IONISATION

Um die DC-Feld Theorie zu prüfen, war eine gleichzeitige Messung der Erzeugung von Photoelektronen und der Zweiten Harmonischen geplant. Dies geschah wegen der Annahme, daß die DC-Felder abhängig von der Photoelektronendichte sein müßten (s. Theorie, insbesondere Formeln (9,12)). Wäre es möglich, durch Erhöhung der Photoelektronendichte (z.B. durch eine gleichzeitige Einstrahlung von nicht-resonanten Licht aus einem zweiten Laser) eine Erhöhung der Intensität der Zweiten Harmonischen nachzuweisen, so hätte zumindest qualitativ die DC-Feld Theorie einen Anhaltspunkt gewonnen.

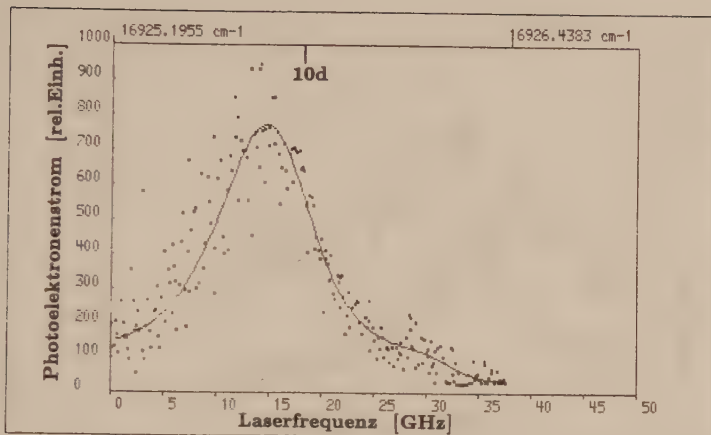


Abb. 19: Photoelektronenstrom in Abhängigkeit der Laserfrequenz für die Anregung des $4s$ - $10d$ 2-Photonen Übergangs. Die Teilchendichte im Atomstrahl beträgt $N = 6.3 \times 10^{11} \text{ cm}^{-3}$.

Eine gleichzeitige Messung der Photoelektronen und der Zweiten Harmonischen war, wie schon in 3.3.4 angeführt, nicht möglich.

Jedoch konnte bei niedriger Atomstrahldichte ein leistungsverbreitertes und gering rotverschobenes 3-Photonen Ionisationssignal gemessen werden. Hierzu wurde die Laserfrequenz um die 2-Photonen Resonanz des $4s$ - $10d$ Übergangs durchgestimmt (s. Bild 19).

Eine nicht-resonante gleichzeitige Überlagerung eines zweiten Laserpulses bei 532 nm (Frequenzverdopplung des Nd:YAG Lasers) ergab eine Erhöhung des Photoelektronensignals um einen konstanten Untergrund. Dabei muß darauf hingewiesen werden, daß die 532 nm Strahlung quasi-resonant mit dem $4s$ - $4p$ Übergang ist. Dabei wurden die Teilchendichte und die 2-Photonen-resonante (590 nm) Laserintensität konstant gehalten.

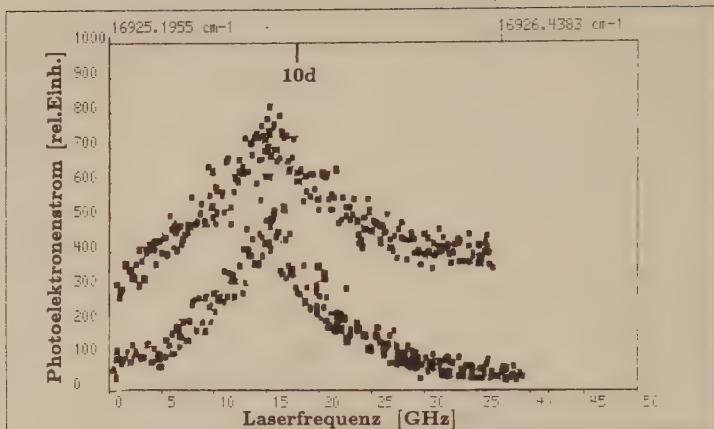


Abb. 20: Photoelektronenstrom in Abhängigkeit der Laserfrequenz für den $4s-10d$ 2-Photonen Übergang mit (oben) und ohne (unten) zusätzlicher gleichzeitiger Einstrahlung nichtresonanter 532 nm Strahlung. Die Teilchendichte im Atomstrahl war $N = 4 \times 10^{11} \text{ cm}^{-3}$.

4.2.3. ABHÄNGIGKEIT VON DER LASERLEISTUNG

Die SHG Strahlung und die SHRS Strahlung haben unterschiedliche Abhängigkeiten von der Laserintensität, wie im theoretischen Teil der Arbeit schon beschrieben wurde. In den folgenden Abschnitten werden die Messungen gezeigt und diskutiert, die diesbezüglich durchgeführt wurden.

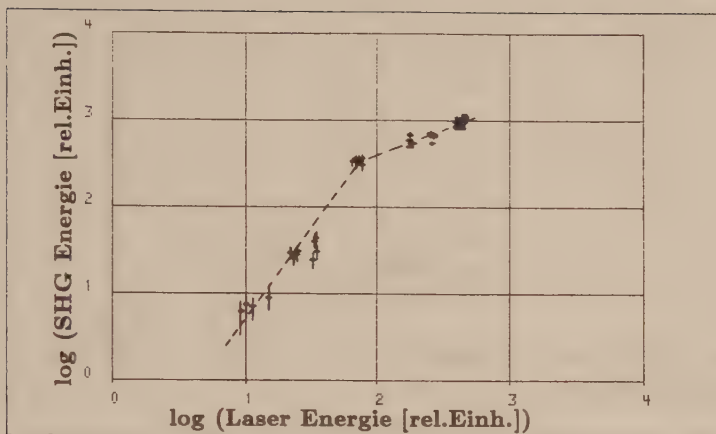


Abb. 21: 10d-4s SHG-Linie in Abhängigkeit von der Laserintensität in log-log Auftragung: die gestrichelte Linie im unteren Bereich zeigt die Steigung 2, die im oberen Bereich zeigt Steigung 0.5 und deutet auf Sättigung. Die Absolutwerte der Intensitäten sind mit relativ großen Fehlern behaftet. Die Laserintensitäten konnten jedoch durch Verwendung geeicher Graufilter (Toleranz $\pm 5\%$) definiert variiert werden.

4.2.3.1. FREQUENZVERDOPPLUNG

Es ist zu erwarten, daß die Intensität der 2.Harmonischen im ungesättigten Bereich quadratisch von der Laserintensität abhängt. Bei höherer Laserleistung wird der 2-Photonen Übergang gesättigt und die Abhängigkeit wird linear oder kleiner als linear²¹.

Eine solche charakteristische nichtlineare Abhängigkeit wurde auch tatsächlich im Experiment gemessen.

Dabei wurde die Teilchendichte konstant gehalten und die Laserleistung mittels

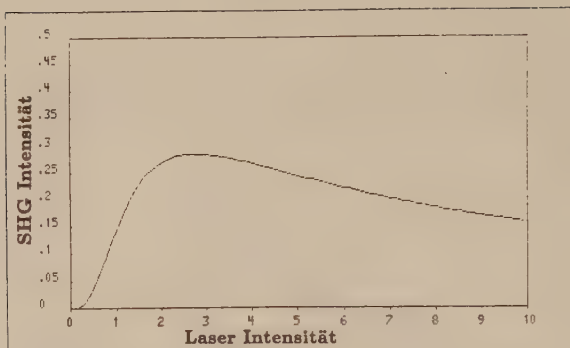


Abb. 22: Die gerechnete Abhängigkeit der SHG-Intensität von der Laserintensität (nach Elçi und Depatie).

Abschwächer (Graufilter) variiert^[11]. Gemessen wurde das Zeitintegral der Intensität. Der gemessene Wirkungsgrad η ((SHG-Pulsenergie)/(Laserpuls-Energie)) für resonante Einstrahlung auf den Zweiphotonen-Übergang (sowohl für den 4s-10d als auch für den 4s-12s Übergang) ergab, bei einer Laserintensität von $\approx 6 \text{ GW/cm}^2$ und einer Teilchendichte von $1 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$, $\eta \approx 4 \times 10^{-12}$.

Eine zusätzliche nichtresonante gleichzeitige Einstrahlung von 532 nm Laserpulsen um die Photoelektronendichte, und damit die DC-Feldstärke, zu erhöhen, lieferte keine Erhöhung des SHG-Signals.

In der Dichtematrix-Beschreibung von Elçi und Depatie⁵⁴ wird eine Abhängigkeit der Intensität der 2. Harmonischen von der Laserintensität erwartet, die für steigende I_{ν_1} zuerst kubisch, dann quadratisch (typisches SHG-Verhalten), später linear und konstant (Sättigung des 2-Photonen Übergangs) ist, und schließlich mit weiter wachsender Laserintensität abfällt (s. Bild 22).

Für geringe Teilchendichten konnte das Sättigungsverhalten gemessen werden

[11] Da sich die Pulsform noch stärker änderte, wenn die Pumpleistung der Blitzlampen des Nd:YAG Lasers variiert wurde, wurde bei den Messungen die Laserleistung immer maximal gehalten und dann mit Graufiltern abgeschwächt

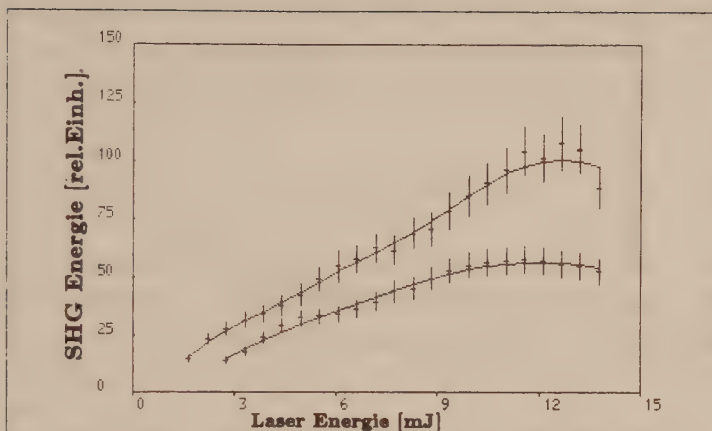


Abb. 23: Die gemessene Abhängigkeit der SHG-Energie von der Laserenergie im Sättigungsbereich. Die obere Kurve entspricht einer Teilchendichte von ca. $2.8 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$, die untere von ca. $2.2 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$.

(s. Bild 23). Dabei konnte das von Elçi vorausgesagte Verhalten qualitativ verifiziert werden. Die Abnahme des Signals bei hohen Laserintensitäten ist auf den dynamischen Stark-Effekt zurückzuführen.

4.2.3.2. STIMULIERTE HYPER-RAMAN STREUUNG

Es wurde die von der Theorie vorausgesagte Abhängigkeit der Intensität des Idler-Signals von der Laserleistung beobachtet. Es wird erwartet, daß , im Kleinsignal Bereich und für kleine Pumpleistungen gilt

$$I_{\nu_3} \simeq I_{S0} e^{\alpha N L}$$

wobei

$$\alpha \propto I_{\nu_1}^2$$

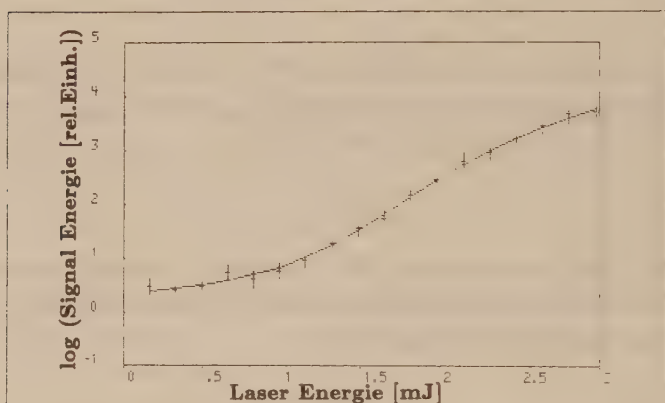
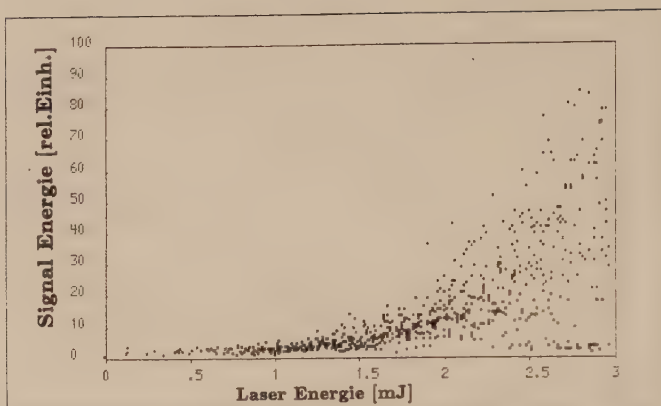


Abb. 24: Die gemessene Abhängigkeit der Idler-Energie von der Laserenergie. Die obere Kurve zeigt die exponentielle Abhängigkeit, die untere zeigt das nichtlineare Verhalten vom Verstärkungskoeffizienten α .

wie in Formel(38) schon angegeben wurde. Für hohe Pumpleistungen wird α unabhängig von I_{ν_1} .

Für geringe Pumpleistungen wurde die Meßkurve von Bild 24 (oben) erhalten, in der die exponentielle Abhängigkeit ersichtlich wird. Wird diese Kurve nochmal

geglättet und halblogarithmisch aufgetragen (Bild 24 unten), ergibt sich klar der quadratisch von der Laserleistung abhängige Verstärkungskoeffizient α , der charakteristisch für die 2-Photonen stimulierte Hyper-Raman Streuung ist.

4.2.4. ABHÄNGIGKEIT VON DER TEILCHENDICHTE

Im Theorie-Teil wurde schon erwähnt, daß die Idler-Linie und die 2. Harmonische verschiedenartige Abhängigkeiten von der Teilchendichte haben müssen. Im ersten Fall (Idler-Linie) muß diese Abhängigkeit exponentiell sein, mit einer anschließenden Sättigung, die auftritt, wenn die exponentiell verstärkte Linie den Sättigungswert erreicht²¹.

Im zweiten Fall (SHG) ist die Dichteabhängigkeit kubisch, wie im Theorie-Teil dargelegt, wenn die Stöße verantwortlich für die Zerstörung der Symmetrie sind, und höher als kubisch für die DC-Feld-Theorie. Die kürzlich publizierte Theorie von Elçi⁵⁴ sagt hingegen eine quadratische Abhängigkeit voraus.

Experimentell war die Messung für die Idler-Linie viel einfacher als für die SHG-Linie, da die erste schon bei relativ geringen Teilchendichten auftrat. Die Dichte wurde variiert indem die Ofentemperatur langsam erhöht wurde und sich dadurch der Dampfdruck im Ofen erhöhte. In regelmäßigen zeitlichen Abständen wurde ein Blendenverschluß vor dem Meßquarz geöffnet und die Dichte aufgenommen, die sich nur langsam veränderte. Es wurden die Laser- und Signal-Pulsenergien für jeden Laserschuß einzeln aufgenommen und als indexierte Variable als Funktion der Pulszahl gespeichert. Da die Teilchendichte auch als Funktion der Pulszahl aufgenommen wurde, konnte jeweils eine Anzahl von Signal-Pulsen einer Dichte zugeordnet werden.

4.2.5. IDLER-LINIE

Es wurde die Abhängigkeit von der Teilchendichte für die $11p - 4s$ Linie bei resonanter Pump-Einstrahlung der Linien $4s - 12s$ - und $4s - 10d$ gemessen. Um einen Vergleich mit der Theorie herstellen zu können, ist es erforderlich, abzuschätzen, in welchem Bereich Rabinfrequenz und Relaxationsraten liegen.

Bei maximaler Pumpleistung (6.1 GW/cm^2) wurden, für den $4s - 12s$ und für den $4s - 10d$ Übergang jeweils eine 2-Photonen Rabifrequenz von 18.5 GHz und 24.4 GHz abgeschätzt. Die spontanen Zerfallsraten liegen für Kalium⁴⁵, für das $12s$ Niveau bei $8 \times 10^{-4} \text{ ns}^{-1}$ und für die $11p$ und $10d$ Niveaus bei $3 \times 10^{-4} \text{ ns}^{-1}$. Die Relaxationsrate γ_2 ergibt sich aus

$$\gamma_2 = \gamma_{rad} + \gamma_{coll}$$

wobei γ_{rad} die spontane Zerfallsrate, und γ_{coll} die stoßinduzierte Zerfallsrate ist. Für γ_{coll} gilt

$$\gamma_{coll} = \sigma_{coll} \bar{v}_{th.rel} N_{4s}$$

wobei σ_{coll} der Wirkungsquerschnitt zwischen allen Stoßpartnern und den angeregten $12s$ Atomen ist und N_{4s} die Teilchendichte der Atome im Grundzustand. Da in diesen Experimenten die Stöße zwischen gleichartigen Atomen sind und die Mehrzahl der Stoßpartner näherungsweise im Grundzustand angenommen wird, gilt⁴⁶

$$\sigma_{K-K^*} = \pi \langle r^2 \rangle = \frac{1}{2} \pi (n^*)^2 \{5(n^*)^2 + 1 - 3l(l+1)\} \approx \frac{5}{2} \pi (n^*)^4 \text{ a.u.}$$

wobei n^* die effektive Hauptquantenzahl und l die Drehimpulsquantenzahl ist. Für σ_{coll} wird also der geometrische Querschnitt angenommen, bei $n^* = 12$ ist $\sigma_{coll} \approx 4.1 \times 10^{-12} \text{ cm}^2$. $\bar{v}_{th.rel}$ ist die mittlere relative Geschwindigkeit der Stoßpartner zueinander. Für die Abschätzung wird angenommen, daß im Atomstrahl die Variation der Geschwindigkeiten zwischen den Stoßpartnern halb so groß ist wie die in einem Gas mit entsprechender Temperatur. Für eine Temperatur von $\approx 500^\circ \text{C}$ und einer Teilchendichte von 10^{14} cm^{-3} bekommt man $\gamma_2 \approx 4 \times 10^{-2} \text{ ns}^{-1}$.

Für stoßverbreiterte Medien ist die nicht-diagonale Phasenrelaxationsrate $\gamma_{21} = \frac{1}{2}(\gamma_2 + \gamma_1) + \gamma_{ph}$. Dabei hat γ_{21} die gleiche funktionelle Form wie γ_2 aber die σ 's sind jetzt die für Phasenrelaxation²¹.

Auch wenn man eine (sehr) hohe Phasenrelaxationsrate von $\approx 10 \text{ ns}^{-1}$ annimmt, ist²¹ (s. Formel (35,36))

$$|V_{21}|^2 \gg \frac{\gamma_{21}}{2(\frac{2}{\gamma_2} + \frac{1}{\gamma_1})}$$

Da $I_1^{*2} \gg 1$, und in der Annahme, daß $\gamma_{13} \approx \gamma_{23}$ und $\gamma_3 \gg \gamma_2$ ist, wird, aus (39):

$$\alpha = \frac{k_2 |d_{23}|^2}{\epsilon_0 2 \hbar 4 \gamma_{13}}$$

Bei Einsetzen der Werte und für $\gamma_{13} = 10 \text{ ns}^{-1}$, hat man

$$\alpha_{th} = 3.8 \times 10^{-13} \text{ cm}^2$$

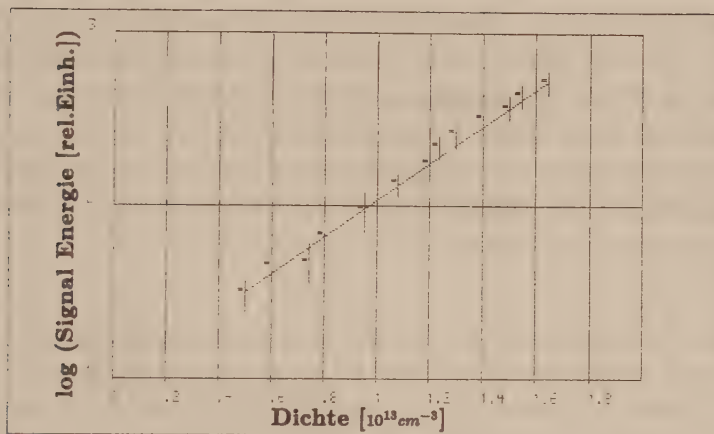


Abb. 25: 11p-4s (Idler)-Linie in Abhängigkeit der Teilchendichte, auf einer halb-logarithmischen Skala aufgetragen.

Im Experiment war $L = 5 \text{ cm}$ konstant, und die Dichte wurde variiert. Aus der Messung von Bild 25 entnimmt man, für den Verstärkungskoeffizienten:

$$\alpha_{exp} = \frac{1}{L} \frac{\Delta(\log I_{idler})}{\Delta N} \approx \frac{1}{5 \text{ cm} \times 10^{-13} \text{ cm}^3} = 2 \times 10^{-14} \text{ cm}^2$$

Die Diskrepanz zwischen α_{th} und α_{exp} läßt sich durch die vielen Näherungen und Annahmen erklären, die für die Berechnung von α_{th} gemacht wurden, vor allem $\gamma_3 \gg \gamma_2$. Aus dem Faktor $(\frac{1}{\gamma_2} - \frac{1}{\gamma_3})$ im Zähler sieht man sofort, daß eine nicht-vernachlässigbare Relaxationsrate γ_2 schon zu einer viel geringeren Verstärkung führt.

4.2.6. ABHÄNGIGKEIT DER FREQUENZVERDOPPLUNG VON DER TEILCHENDICHTE

Es ergaben sich zunächst experimentelle Schwierigkeiten bei der Bestimmung der Teilchendichte-Abhängigkeit der 2. Harmonischen. Da die SHG-Linie erst ab relativ hohen Teilchendichten auftrat ($N > 10^{13} \text{ cm}^{-3}$), war beim Hochfahren der Dichte sehr schnell der Punkt erreicht, wo sich die Kollimation der Atomstrahlen änderte und so die Schwingquarz-Messung verfälschte. Als dieses Problem geklärt war (s. Anhang), wurde bei den Messungen darauf geachtet, daß sich die Kollimation der Atomstrahlen während der Messungen nicht änderte. Dies erreichte man, indem eine sehr hohe Düsentemperatur eingestellt (650°C) und während der Messung konstant gehalten wurde.

Die Messungen ergaben für die SHG eine quadratische Abhängigkeit von der Teilchendichte, sowohl für den $4s - 12s$ Übergang als auch für den $4s - 10d$ Übergang. Für die Stoßtheorie von Guzman²¹ waren die Erwartungen, daß insbesondere bei geringen Teilchendichten (wo die Wahrscheinlichkeit einer "Stoß-Sättigung", s. Abschnitt 2.3.2, geringer hätte sein müssen), eine N^3 -Abhängigkeit der 2. Harmonischen Energie auftauchen würde.

Die neu erstellte Theorie von Elçi und Depatie⁵⁴ erwartet eine quadratische Abhängigkeit, die in diesem Experiment bestätigt werden konnte.

Die höchsten Teilchendichten, die in diesem Experiment erreicht wurden, waren immer noch um 1-2 Größenordnungen kleiner, als die früherer Experimente (Heat-Pipes oder Zellen). Die Stoßrate war bei der Atomstrahl-Anordnung stark reduziert. Im Vergleich zu Bedingungen gleicher Teilchendichte in einem isotropen Medium (Dampf), ergibt ein Kollimationswinkel von $\theta_{1/2}$ eine Reduzierung der Stoßrate um einen Faktor $F = \left(-\frac{1}{4}\right)^{-1}$, wobei $\theta_{1/2}$ in Radian angegeben wird. Dies ergibt sich aus folgender Überlegung: In einem isotropen Medium sind die Geschwindigkeitsvektoren gleichmäßig über alle Richtungen verteilt, also über 4π . Beschränkt man die Geschwindigkeitsrichtungen innerhalb eines Raumwinkels, der durch $\theta_{1/2}$ definiert wird, reduziert sich infolgedessen die Stoßrate (bei gleichblei-

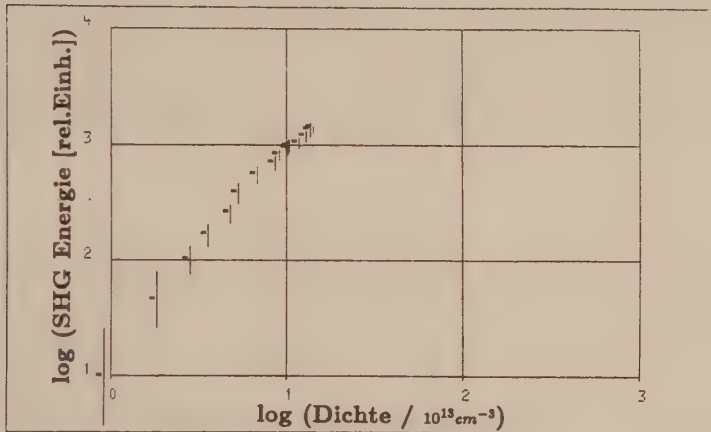
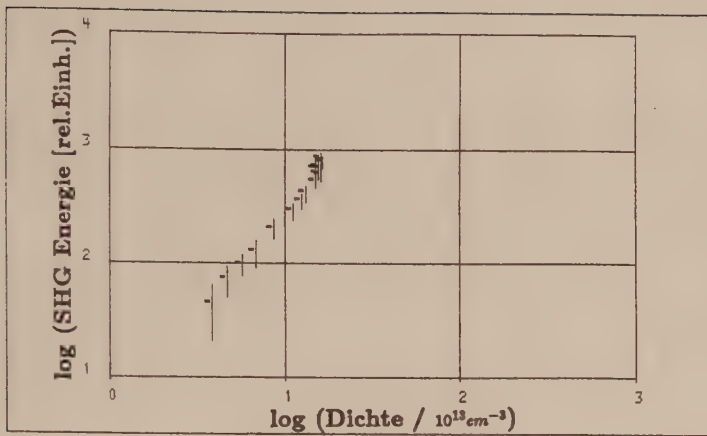


Abb. 26: SHG-Signal in Abhängigkeit der Teilchendichte; im oberen Bild für die 10d-4s Linie, im unteren für die 12s-4s Linie.

bender Maxwell-Verteilung) um einen Faktor

$$\frac{4\pi}{2\pi(1 - \cos \theta_{1/2})} \approx \frac{4}{\theta_{1/2}^2}$$

Für den gemessenen Kollimationswinkel von 7° (0.122 radian) ergibt dies $F \approx 270$. Bei dieser Überlegung ist die veränderte Maxwell-Verteilung des Atomstrahles nicht mit berücksichtigt worden. In einem perfekt kollimierten Strahl hätte man

zwar $F = \infty$, aber immer noch Stöße zwischen schnellen und langsamen Atomen. Wenn dies berücksichtigt wird, dann erhält man eine zusätzliche Erhöhung der Stoßrate. Andererseits hat die Verschmälerung der Geschwindigkeitsverteilung infolge der Überschallströmung zur Folge, daß die Stoßrate abnimmt.

5. Diskussion

In der folgenden Diskussion sollen die wesentlichen Ergebnisse dargelegt und diskutiert werden. Die früheren Modelle^{13,14,17,18,21,29,30} für die Frequenzverdopplung erwiesen sich als unzulänglich. Ein neues Stoßmodell⁵⁴ konnte im Experiment qualitativ bestätigt werden. Ein quantitativer Vergleich ergab zunächst einen theoretischen Wirkungsgrad, der geringer ist als der gemessene Wirkungsgrad.

Das Hauptziel dieser Arbeit war, die Dipol-verbotene Frequenzverdopplung in Atomstrahlen experimentell zu untersuchen. Im Verlauf der Messungen wurden zwangsläufig auch andere 2-Photonen resonante Effekte beobachtet, wie die stimulierte Hyper-Raman Streuung in Form der Idler-Welle und die 3-Photonen Ionisation.

Die von der Theorie von Guzman²¹ vorhergesagten Abhängigkeiten für die stimulierte Hyper-Raman Streuung (SHRS) wurden im Experiment bestätigt: die gemessene exponentielle Abhängigkeit des Idler-Signals von der Teilchendichte bestätigt, daß es sich um einen nicht-parametrischen Prozess handelt, der hier im Kleinsignal-Bereich gemessen wurde; die nichtlineare Abhängigkeit des exponentiellen Verstärkungskoeffizienten der Idler-Welle von der Pump-Intensität bestätigt, daß es sich um 2-Photonen gepumpte SHRS handelt. Die schmälere Durchstimmkurve (Abhängigkeit der Signalintensität von der Laserfrequenz) der SHRS gegenüber derjenigen der zweiten Harmonischen und derjenigen der 3-Photonen Ionisation ist dem exponentiellen Charakter des Verstärkungsprofils der SHRS und der geringeren Leistungsverbreiterung des $|3\rangle\text{-}|1\rangle$ Übergangs zuzuschreiben. Die Theorie von Guzman scheint das Verhalten der SHRS somit korrekt zu beschreiben.

Die 3-Photonen Ionisation konnte zwar nicht zusammen mit der Frequenzverdopplung beobachtet werden, es bestätigte sich jedoch, daß dieser Prozeß schon bei sehr geringen Teilchendichten und Pumpintensitäten ziemlich stark vorhanden ist.

Bei der Frequenzverdopplung gab es jedoch keine Übereinstimmung zwischen der Theorie von Guzman²¹ oder der DC-Feld Theorie^{29,17,13} und dem Experiment. Es wurde für die Teilchendichte-Abhängigkeit der Frequenzverdopplung lediglich ein N^2 -Verhalten gemessen. Die gleichen Ergebnisse wurden auch von einer Reihe anderer Experimente^{13,15,17,18,27,28} erhalten, die bei höheren Dichten und unter nicht-stoßfreien Bedingungen durchgeführt wurden.

Die Erwartung der Stoßtheorie von Guzman²¹, die Frequenzverdopplung würde bei geringen Dichten und unter quasi-stoßfreien Bedingungen eine N^3 -Abhängigkeit aufweisen (s.(24)) konnte nicht bestätigt werden. Ebenso wenig scheint das DC-Feld Modell^{13,29,17}, das eine N^a -Abhängigkeit (mit $a \geq 3$) erwartet, zutreffend zu sein.

Dagegen scheint die kürzlich publizierte Theorie von Elçi und Depatie⁵⁴ die N^2 -Abhängigkeit der zweiten Harmonischen von der Teilchendichte korrekt zu beschreiben.

Die gemessene Abhängigkeit der Frequenzverdopplung von der Laserintensität ist in Übereinstimmung mit den Stoßtheorien von Elçi⁵⁴ und Guzman²¹, nicht aber mit der DC-Feld Theorie^{29,13,17}. Es wurde eine Abhängigkeit der Intensität der zweiten Harmonischen von der Laserintensität gemessen, die für zunehmende Laserintensität zuerst quadratisch, dann linear, danach konstant und schließlich abnehmend war. Dies wird auch von den erwähnten Stoßtheorien erwartet. Die DC-Feld Theorie sagt jedoch eine $I_{\nu_1}^b$ (mit $b \gg 3$) -Abhängigkeit, die für hohe Laserintensitäten geringer wird, voraus.

Die Stoßtheorie von Elçi liefert also als einzige eine korrekte qualitative Beschreibung der Frequenzverdopplung in Dämpfen. Eine quantitative Abschätzung des Wirkungsgrades η , bei der die im Experiment verwendeten Werte (s. Abschnitt 4.2.3.1) in die Formel (30) eingesetzt wurden, ergab, allein für den Faktor $\frac{N^2 |d_{10}|^2}{4 \pi^2 \epsilon_0^2 |E_{\nu_1}|^2}$, einen Wert von $\approx 10^{-12}$. Bei dem gemessenen Wirkungsgrad von $\approx 4 \times 10^{-12}$ würde dies jedoch bedeuten, daß das Stoßpotential-Matrixelement ν_0 größenordnungsmäßig im Bereich der Energie des 1. angeregten Zustands E_1^a

($\approx 1.6eV$), und damit im Bereich der Bindungsenergie liegt. Dies ist aber schwer zu akzeptieren, denn eine Abschätzung für V_0 ergibt, nach der Formel (31) des Stoßkomplex-Modells zweier identischer Atome, im besten Fall einen Wert von $\approx 10^{-3}eV$. Neue theoretische Untersuchungen sind im Gang⁵⁶ um diesen Punkt noch zu klären: ein Vorschlag wäre⁵⁶ z.B., die Streuung eines Atoms an einem freien Elektron. Dies hätte in Formel (31) zur Folge, daß aufgrund der reduzierten Masse des Stoßelektrons, das Stoßpotential-Matrixelement beträchtlich erhöht würde. Ein solcher Mechanismus hätte keine qualitative Änderung der Theorie zur Folge, er bedarf jedoch noch einer sorgfältigen Untersuchung.

Anhang A. Kollimation der Atomstrahlen

Die Methode der Dichtemessung mit einer Schwingquarzvorrichtung setzt voraus, daß sich die Kollimation der Atomstrahlen nicht während der Messungen verändert, oder genauer, daß sie sich zumindest in bekannter und reproduzierbarer Weise verändert.

Im Verlauf dieses Experiments wurde beobachtet, daß sich die Kollimation in der Tat änderte als die Teilchendichte in den Bereich kam, in dem Frequenzverdopplung beobachtet wird. In diesem Anhang sollen die theoretischen Grundlagen der Atomstrahlanordnung erläutert und die Messungen beschrieben werden, die in Zusammenhang mit der Bestimmung der Atomstrahldichte durchgeführt worden sind.

A.1. THEORIE

In den meisten Experimenten an Atomstrahlen ist es relativ einfach, die Atomstrahlbedingung $a \ll \bar{\lambda}$ (a ist der Durchmesser der Öffnung bzw. Kanals, und $\bar{\lambda}$ ist die mittlere freie Weglänge λ gemittelt über die Kanallänge l) einzuhalten, da die notwendigen Dichten so gering sind, daß der Druck im Ofenbehälter auch niedrig gehalten werden kann.

Um höhere Atomstrahlstärken zu erzeugen (Teilchen pro Steradian pro Sekunde) ist man gezwungen, höheren Druck im Atomstrahlofen zu erzeugen. Um eine gute Atomstrahlqualität, wofür die Kollimation ein Maß ist, auch bei Zusammenbruch der Atomstrahlbedingung zu erhalten, müssen entsprechend Kollimatoren oder enge Röhren (Kanäle) eingesetzt werden.

Wenn enge Röhren verwendet werden, gelten dann ganz andere Bedingungen, von denen die oben angeführte Atomstrahlbedingung nur ein Spezialfall ist⁴⁰. So gilt zum Beispiel als äußerste Grenze eines effusiven Strahls in einer engen Röhre die Bedingung $a \ll \lambda$ nur in einem kleinem Bereich $z < l_0$, mit $\bar{\lambda} \ll l$, sonst gilt $a \leq \lambda$ für $l > z > l_0$, wobei auch $l_0 \gg a$. Die Größe l ist die Länge der Röhre (bzw. Kanal oder Kapillare), z die Entfernung vom Röhrenaussgang (Niederdruckseite,

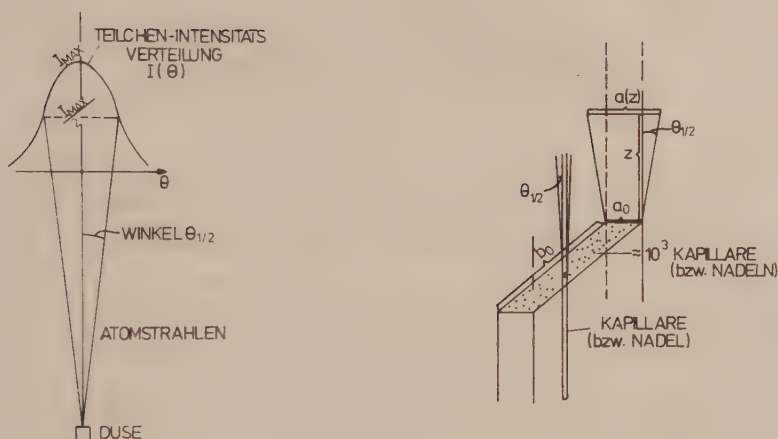


Abb. 27: Schematische Darstellung der Größen, die für die Bestimmung der Teilchendichte und der Kollimation der Atomstrahlen wichtig sind.

$z = 0$) in Richtung Röhreneingang (Hochdruckseite, $z = l$), λ ist die lokale mittlere freie Weglänge, und $\bar{\lambda}$ ergibt sich als Mittelwert von λ über die Röhrenlänge ($\bar{\lambda} = (\int_0^l \lambda(z) dz) / l$). Bei diesen Bedingungen gilt, für die Teilchendichte N innerhalb der Röhre, nahe der Austrittsöffnung $N = \rho z$, wobei ρ eine Konstante ist, und $z \gg a$, es tritt eine sogenannte Knudsen-Strömung auf⁴⁰. Wird der Druck noch mehr erhöht, so gilt die Bedingung $\lambda \gg a$ auch in der Nähe des Röhrenendes nicht mehr, und ab diesem Punkt treten dann die Erscheinungen einer Expansion eines Gases von einem Vorratsbehälter in das Vakuum auf⁴¹. Ist die freie Weglänge λ sehr viel kleiner als der Düsendurchmesser, so finden während der Expansion viele Stöße statt. So wird die thermische Energie der Teilchen (wobei diese statistisch verteilte Geschwindigkeiten haben) teilweise in eine Expansion-Energie einer gerichteten Molekularströmung umgewandelt, bei der die Teilchen eine mehr oder weniger enge Verteilung ihrer Geschwindigkeiten um eine Flußgeschwindigkeit aufweisen.



Abb. 28: Querschnitt durch die Kanalanordnung, links die Nadelanordnung, rechts die Kapillarenanordnung. Die Zeichnungen sind nicht maßstäblich.

In diesem Experiment wurde eine Vielzahl von Kanälen durch die Zwischenräume dicht aneinander gepackter Nadeln (bzw. Edelshtahlkapillare) gebildet (s. Bild 28). Die Querschnittsfläche von einem dieser Zwischenräume, die nicht kreisförmig sind, entspricht dann, für Nadel- bzw. Kapillarenaußenradien r_a , einer Kreisfläche mit Effektivradius $r_{eff} = 0.2266 r_a$. Eine einfache Methode, mit der vorhandenen Apparatur die Teilchendichte in der Wechselwirkungszone zu bestimmen, wird im Folgenden beschrieben.

Die Kollimation der Düsenanordnungen kann durch transversales Schwenken des Quarzhalters gemessen werden (wenn die Fangbleche herausgenommen werden). (s. Bild 12)

Durch Auftragen der Teilchendichte im Atomstrahl, die aus der Messung der Massenablagerungsrate auf dem Schwingquarz und aus der Düsensentemperatur berechnet wird (s. Formel (47)), in Abhängigkeit des Winkels θ zwischen der Senkrechten zur Düsenfläche und der Geraden zwischen den Düsen und dem Quarzplättchen, kann der Winkel $\theta_{1/2}$, bei dem die Teilchendichte auf die Hälfte fällt, bestimmt werden. Da die Düsenkanäle zylindrische Symmetrie haben, gilt der Winkel $\theta_{1/2}$ sowohl für Ausbreitung in x- wie auch in y-Richtung (s. Bild 27).

In der Annahme, daß die Teilchen sich im Vakuum geradlinig ausbreiten, kann man, wenn die Dichte in einer Höhe Z_1 über den Düsen gemessen wird, mit Kenntnis des Kollimationswinkels $\theta_{1/2}$ und der Dimensionen der gesamten Austrittsöffnung a_0 und b_0 (s. Bild 27), das Verhältnis der Gesamtfläche (die von den Atomstrahlen senkrecht getroffen wird) in Meßhöhe Z_1 und in Wechselwirkungshöhe Z_0 ausrechnen. Durch multiplizieren der in Höhe Z_1 gemessenen Dichte mit dem Verhältnis der Flächen bekommt man die Dichte in Wechselwirkungshöhe. Dies gilt für die Annahme, daß $Z_1 \gg a_0$ und daß $\cos(\theta_{1/2}) \approx 1$.

So hat man

$$\frac{A(Z_1)}{A(Z_0)} = \frac{a_0 b_0 + (a_0 + b_0 + Z_1 \tan \theta_{1/2}) Z_1 \tan \theta_{1/2}}{a_0 b_0 + (a_0 + b_0 + Z_0 \tan \theta_{1/2}) Z_0 \tan \theta_{1/2}} \quad (48)$$

So kann man, ohne ein Modell der Strömung der Teilchen aus den Düsen zu erstellen, die Dichte in der Wechselwirkungszone bestimmen.

Wichtig ist, daß sich die Kollimation der Atomstrahlen im Verlauf einer Messung (in der die Teilchendichte bestimmt werden muß) nicht ändert. Ändert sie sich, so ändert sich $\theta_{1/2}$ und damit auch die Fläche $A(Z_1)$, so daß das Verhältnis zwischen der Dichte in Z_1 und Z_0 nicht mehr konstant ist.

Bleibt die Atomstrahlbedingung $\lambda \gg l \gg a$ erhalten, wenn die Dichte variiert, so bleibt $\theta_{1/2} \approx \frac{a}{l}$, unabhängig von der Dichte N . Wird, wie oben erklärt, die Dichte soweit erhöht, daß die reine Atomstrahlbedingung nicht mehr gilt, sondern eine Knudsen-Strömung auftritt, so wird die Kollimation nunmehr durch

$$\theta_{1/2} = \frac{2^{\frac{7}{4}} 3^{\frac{1}{2}} \sigma S^{\frac{1}{2}}}{1.78 a^{\frac{1}{2}} \bar{c}^{\frac{1}{2}}}$$

gegeben⁴⁰, wobei σ der Moleküldurchmesser, $\bar{c}$ die mittlere thermische Geschwindigkeit, und S die Gesamtströmungsrate (Teilchen/s) pro Kanal. S ist durch $S = \frac{2}{3} \pi N \bar{c} a^3$ gegeben.

Verläßt man den Knudsen-Strömungsbereich und erhöht den Ofendruck soweit, daß eine Expansion des Teilchenstromes ins Vakuum stattfindet, so kann eine Erhöhung des Druckes eine Verminderung des Öffnungswinkels $\theta_{1/2}$ bewirken. Die Teilchen bekommen dann eine Strömungsgeschwindigkeit, die von den Richteigenschaften der Düsen abhängt⁴¹.

A.2. KOLLIMATIONSMESSUNGEN

Für die Messung der Kollimation wurde die Teilchendichte im Atomstrahl so gemessen, wie im Abschnitt "Teilchendichte im Atomstrahl" schon geschildert (s. Formel (47)); der Unterschied bestand diesmal jedoch darin, daß der Schwingquarz transversal zum Atomstrahl und in verschiedenen Höhen bewegt werden konnte. Die gemessenen Kollimationen der beiden Düsenanordnungen sind auf

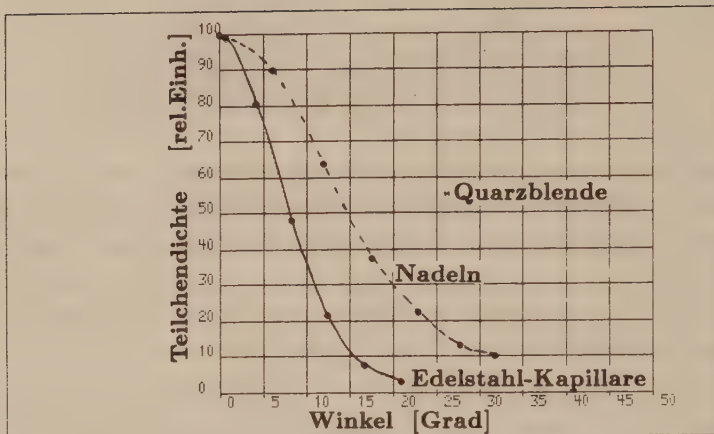


Abb. 29: Kollimation der beiden Düsenanordnungen. Aufgetragen ist die Teilchendichte als Funktion des Öffnungswinkels; die gestrichelte Linie bezieht sich auf die Nadeln, bei $T_{\text{Ofen}} = 280^\circ\text{C}$, $T_{\text{Düse}} = 305^\circ\text{C}$, und ergibt $\theta_{1/2} = 14.6^\circ$. Die durchgezogene Linie bezieht sich auf die Edelstahlkapillare, bei $T_{\text{Ofen}} = 510^\circ\text{C}$, $T_{\text{Düse}} = 607^\circ\text{C}$, und ergibt $\theta_{1/2} = 6.9^\circ$. Beide Kurven sind so normiert worden, daß ihre Maxima übereinstimmen. Der kleine horizontale Fehlerbalken mit der Bezeichnung 'Quarzblende' stellt den Winkel dar, unter dem die Öffnung des Schwingquarzes von der Düsenöffnung her erscheint.

Bild 29 zu sehen. Da für die Messung der Kollimation die Bestimmung der absoluten Dichte unwichtig ist, sind die Teilchendichten in den Bildern in relativen Einheiten angegeben. Für diese Teilchenverteilungen liegen $\approx 80\%$ der Teilchen innerhalb des Winkels $2\theta_{1/2}$.

Für die Düsenanordnung mit den Nadeln wurde $\theta_{1/2} = 14.6^\circ$, für die mit Edelstahlkapillaren wurde $\theta_{1/2} = 6.9^\circ$ gemessen (s. Bild 29).

Die Formel (48) ergibt einen Umrechnungsfaktor für die Dichte:

$$N(Z_0 = 7.5) = N(Z_1 = 170) \times 18.4$$

für die Nadeln, und

$$N(Z_0 = 7.5) = N(Z_1 = 170) \times 12.5$$

für die Edelstahlkapillare.

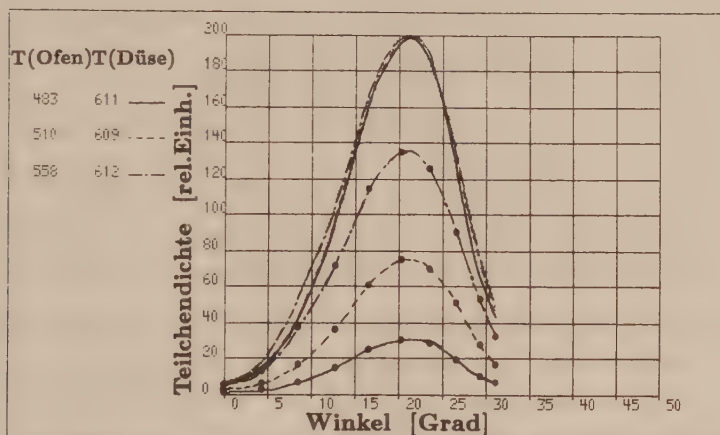


Abb. 30: Kollimationsmessungen bei verschiedenen Temperaturen. Die Meßpunkte sind durch Splines 3. Grades verbunden. Die gefitteten Kurven sind zusätzlich auf übereinstimmende Maxima normiert, so daß man verfolgen kann, ob sich die Kollimation bei den verschiedenen Temperaturen ändert.

Für niedrige Dichten (bis $\approx 10^{13} \text{ cm}^{-3}$) wurde keine Änderung der Kollimation festgestellt. Als die Dichte jedoch erhöht wurde, trat eine empfindliche Abhängigkeit von den jeweiligen Ofen- und Düsen-Parametern auf, die näher untersucht werden mußte. Auf Bild 30 ist zunächst aufgetragen die Kollimation bei verschiedenen Ofentemperaturen, mit den gemessenen Verteilungen, die die Erhöhung der Dichte als Folge der Erhöhung der Ofentemperatur zeigen. Zusätzlich sieht

man die Verteilungen auf dasselbe Maximum normiert, und da ist zu erkennen, daß sich die Kollimation nicht geändert hat, da die normierten Kurven fast aufeinander liegen.

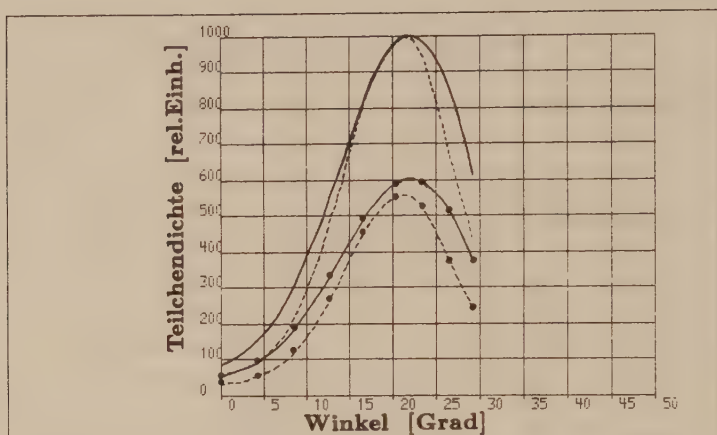


Abb. 31: Änderung der Kollimation bei Betrieb der Apparatur unter extremen Bedingungen; die durchgezogene Linie entspricht $T_{\text{Ofen}} = 580^\circ\text{C}$, $T_{\text{Düse}} = 610^\circ\text{C}$, und ergibt $\theta_{\frac{1}{2}} = 10^\circ$; die gestrichelte Linie entspricht $T_{\text{Ofen}} = 580^\circ$, $T_{\text{Düse}} = 640^\circ\text{C}$, und ergibt $\theta_{\frac{1}{2}} = 7.4^\circ$. Das untere Kurvenpaar entspricht den gemessenen Werten; die Kurven sind mit Splines 3.Grades für die Meßpunkte erzeugt worden. Die oberen Kurven sind die gefitteten Kurven, auf dasselbe Maximum normiert.

Es kommt jedoch ein Bereich, wo sich die Kollimation ändert (s. Bild 31). Bei der abgebildeten Messung bewirkte eine Erhöhung der Düsentemperatur eine Reduzierung von $\theta_{1/2}$. Dieser Effekt ist zurückzuführen auf den Übergangsbereich zwischen Effusion und Überschallströmung. Es war wichtig, diesen Sachverhalt festzustellen, da sich die Messungen der Dichteabhängigkeit der SHG in den soeben angeführten Bereich hineinziehen.

LITERATURVERZEICHNIS

1. P.A.Franken, A.E.Hill, C.W.Peters, G.Weinreich: Phys. Rev. Lett. 7, 118 (1961)
2. W.Kaiser, C.G.Garrett: Phys. Rev. Lett. 7, 229-231 (1961)
3. M.Bass, P.A.Franken, A.E.Hill, C.W.Peters, G.Weinreich: Phys. Rev. Lett. 8, 18 (1962)
4. J.A.Giordmaine: Phys. Rev. Lett. 8, 19-20 (1962)
5. G.H.C.New, J.F.Ward: Phys. Rev. Lett. 19, 556 (1967)
6. J.F.Ward, G.H.C.New: Phys. Rev. 185, 57 (1969)
7. S.E.Harris, R.B.Miles: Appl. Phys. Lett. 19, 385 (1971)
8. D.C.Hanna, M.A.Yuratich, D.Cotter : Nonlinear Optics of Free Atoms and Molecules. Springer Verlag; Berlin Heidelberg New York 1979.
9. D.P.Shelton, A.D.Buckingham: Phys. Rev. A26, 2787 (1982)
10. R.S.Finn, J.F.Ward: Phys. Rev. Lett. 26, 285 (1971);

I.J.Bigio, J.F.Ward: Phys. Rev. A9, 35 (1974)
11. D.S.Bethune, R.W.Smith: Phys. Rev. Lett. 37, 431-434 (1976)
12. A.Flusberg, T.Mossberg, S.R.Hartmann: Phys. Rev. Lett. 38, 59 (1977);
M.Matsuoka, H.Nakatsuka, H.Uchiki, M.Mitsunaga: Phys. Rev. Lett. 38, 894 (1977);
H.Uchiki, H.Nakatsuka, M.Matsuoka: Opt. Comm. 30, 345 (1979)
13. T.Mossberg, A.Flusberg, S.R.Hartmann: Opt. Comm. 25 , 121 (1978)
14. K.Miyazaki, T.Sato, H.Kashiwagi: Phys. Rev. A23, 1358 (1981)
15. R.Freeman, L.E.Bjorkholm, R.L.Panock: Laser Spectroscopy V, ed. by A.R.W.McKellar, T.Oka, B.P.Stoicheff, Springer-Verlag 1981, p.453

16. W.Jamroz, P.E.LaRocque, B.P.Stoicheff: Opt. Lett. 7 , 148 (1982)
17. J.Okada, Y.Fukuda, M.Matsuoka: J.Phys.Soc.Japan 50 ,1301(1981)
18. S.Dinev, A.Guzman de Garcia, P.Meystre, R.Salomaa, H.Walther : Laser Spectroscopy VI, ed. by H.P.Weber, W.Lüthy, Springer-Verlag 1983, p.183
19. J.Heinrich, W.Behmenburg: Appl. Phys. 23, 333 (1980)
20. V.A.Kiyashko, A.K.Popov, V.P.Timofeev, N.P.Makarov, V.Sh.Epstein: Sov.J.Quantum Electron. 14,1645(1984); Appl. Phys.B 36, 53(1985)
21. A.M.Guzman de Garcia: "Nonlinear Processes in Two-Photon Pumped Atomic Vapours", MPQ 91, 9/1984
22. M.Goeppert-Mayer: "Über Elementarakte mit zwei Quantensprüngen", Ann.Phys. 9,273(1931)
23. C.K.Rhodes: "Nonlinear Processes in the Infrared and Ultraviolet", High Power Lasers and Applications, ed. by K.-L.Kompa and H.Walther, Springer Series in Optical Sciences, Vol.9, Berlin: Springer 1978
24. J.A.Armstrong, N.Bloembergen, J.Ducuing, P.S Pershan: Phys. Rev. 127, 1918 (1962)
25. W.Prokofjew: "Über die Wahrscheinlichkeit verbotener s,d-Übergänge der Alkalimetalle", Z. Physik, p.387(1929)
26. R.W.Boyd, D.J.Gauthier, J.Krasinsky, M.S.Malcuit: IEEE J.Quantum Electron., QE-20, 1074(1984)
27. K.Miyazaki: Phys. Rev. A 23, 1350 (1980)
28. K.Miyazaki, T.Sato, H.Kashiwagi, Phys. Rev. Lett. 43, 1154 (1979)
29. D.S.Bethune: Opt. Lett. 6, 287 (1981)
30. D.S.Bethune: Phys. Rev. A 23, 3139 (1981)

31. G.M.Shrum, N.M.Carter, H.W.Fowler: Phil.Mag 3, 27(1927)
32. P.D.Foote, W.F.Meggers, F.L.Mohler: Astrophys. Journal LV, 145(1922)
33. B.H.Datta: Proc. Roy. Soc. ci A, 544(1922)
34. G.Sowerby,P.D.Barratt: Proc. Roy. Soc. cx A, 192(1926)
35. W.H.Louisell, P.Meystre: Phys. Rev. A 23, 1015 (1981)
36. J.Reif: "Erzeugung frequenzveränderlicher Infrarotstrahlung durch stimulierten elektronischen Hyper-Raman-Effekt in Strontium-Dampf ", Dissertation, LMU München 1981
37. A.Omont: Journal de Physique 38, 1343(1977)
38. A.Dorsel, W.Ohnesorge: priv. comm.
39. S.Gerstenkorn, P. Luc: Spectre Moleculaire de l'Iode, Lab. Aime Cotton, Orsay, France
40. J.A.Giordmaine, T.C.Wang : J.Appl.Phys. 31, 4633(1960)
41. W.Demtröder, H.-J. Foth: Phys. Bl. 43, 7(1987)
42. J.B.Anderson, J.B.Fenn: The Physics of Fluids 8, 780(1965)
43. D.Cotter, D.C.Hanna, W.H.W.Tutlebee, M.A.Yuratich: Opt. Comm. 22, 190(1977)
44. J.Heinrich: Dissertation, Universität Düsseldorf (1983)
45. C.Theodosiou: Phys. Rev. A 30, 2881 (1984)
46. M.Hugon, F.Gounand, P.R.Fournier: J.Phys. B , Atom.Molec.Phys. 13, L109(1980)
47. S.H.Autler, C.H.Townes: Phys. Rev. 100, 707 (1955)
48. M.L. Zimmermann, M.G. Littman, M.M Kash, D.Kleppner: Phys. Rev. A 20, 2251 (1979)

49. D. Kleppner, M.G. Littman, M.L. Zimmermann, "Rydberg States of Atoms and Molecules", ch.3, Stebbing and Dunning, Cambridge U.P., 1983
50. C.Reinsch: Smoothing by Spline Functions, Numerische Mathematik 10,177(1967)
51. K.Miyazaki, H.Sakai, T.Sato: IEEE J.Quantum Electron., QE-22,2266(1986)
52. H.A.Bethe, E.E.Salpeter: Quantum Mechanics of One-and Two-Electron Atoms, Springer-Verlag, 1957
53. J.N.Elgin, G.H.C.New: J.Phys. B, Atom.Molec.Phys., Vol.11, 19, 3439(1978)
54. A.Elçi, D.Depatie: "Second Harmonic Generation from Collision Complexes", to be published
55. A.Elçi, D.Depatie: "Radiative Coupling to a Collision Complex", to be published
56. A.Elçi: priv. communication

DANKSAGUNG

Ich danke Herrn Prof. Dr. H. Walther für den Vorschlag zu dieser Arbeit und für seine Unterstützung während ihrer Durchführung.

Dem DAAD sei für die Ermöglichung der Promotion in Deutschland, für die finanzielle Unterstützung und für die freundliche Betreuung während dieser drei Jahre gedankt.

Besonders möchte ich mich bei Herrn Prof. Dr. E. Geneux bedanken. Die interessanten Gespräche ließen manches Licht der Erkenntnis aufleuchten. Dasselbe gilt für Frau Dr. A. Guzman, mit der ich einige wichtige Aspekte diskutierte.

Ganz besonders danke ich aber den Mitgliedern der mechanischen Werkstatt, insbesondere dem Herrn Biberle, Herrn Öhm, Herrn Rauch und Herrn Mose für die unzähligen Ofen-Reparaturen und -Neubauten. Mit Humor und Tatkraft haben sie mir bei vielen Gelegenheiten geholfen.

Bei den Mitgliedern des Lehrstuhls, speziell bei Herrn Ohnesorge für einige späte Stunden im Labor, und Herrn Steiner für tatkräftige Hilfe möchte ich mich noch herzlich bedanken.

Auch den Herren der elektronischen Werkstatt sei für ihre Hilfe gedankt.

Lebenslauf

Name	Christian Stegmann
Geburtsdatum	1.März 1957
Geburtsort	Oakland /U.S.A.
Staatsangehörigkeit	U.Š.A.
Familienstand	ledig
Eltern	Dipl.Ing. Carlos M.H. Stegmann Isabel Perényi de Stegmann

Ausbildung:

1963-1964	Pestalozzi-Schule in Buenos Aires/Argentinien
1965-1974	Visconde de Porto Seguro Schule in São Paulo/Brasilien Abschluß: brasilianisches Abitur
1965-1975	Visconde de Porto Seguro Schule in São Paulo/Brasilien Abschluß: deutsches Abitur
1976-1979	Physikstudium am Instituto de Física da Universidade de São Paulo Abschluß: Bacharelado (B.Sc.)
1980-1982	Physikstudium am Instituto de Física da Universidade de São Paulo Abschluß: Mestrado (M.Sc.)
ab 1984	Promotionsstudium am Max-Planck-Institut für Quantenoptik und an der Sektion Physik der Ludwig -Maximilians Universität in Garching bei München

Berufliche Tätigkeit:

1982-1984	Wissenschaftlicher Mitarbeiter am Instituto de Estudos Avançados in São José dos Campos, São Paulo, Brasilien
-----------	--

